



Caractérisation locale des propriétés à la rupture du combustible nucléaire irradié

Ronan Henry

► To cite this version:

Ronan Henry. Caractérisation locale des propriétés à la rupture du combustible nucléaire irradié. Matériaux. Université de Lyon, 2019. Français. NNT : 2019LYSEI031 . tel-02484840

HAL Id: tel-02484840

<https://theses.hal.science/tel-02484840>

Submitted on 19 Feb 2020

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



N° d'ordre NNT : 2019LYSEI031

THESE de DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE LYON
opérée au sein de
I'INSA-Lyon

Ecole Doctorale N° 34
Ecole doctorale Matériaux de Lyon

Spécialité/ discipline de doctorat : Matériaux

Soutenance prévue le 23/05/2019, par :
Ronan HENRY

**Caractérisation locale des propriétés
à la rupture du combustible
nucléaire irradié**

Devant le jury composé de :

ESTEVEZ Rafaël	Professeur, SIMAP Université de Grenoble	Examineur
GATT Jean-Marie	Ingénieur chercheur CEA Cadarache	Examineur
JOSSE Claudie	Ingénieure d'études, CNRS Université de Toulouse	Examinatrice
LANGLOIS Cyril	Maître de conférences, MATEIS Université de Lyon	Co-directeur de thèse
MARTIN Éric	Professeur, LCTS Université de Bordeaux	Rapporteur
MEILLE Sylvain	Professeur, MATEIS Université de Lyon	Directeur de thèse
PARDOEN Thomas	Professeur, IMMC UC Louvain	Rapporteur
ZACHARIE-AUBRUN Isabelle	Ingénieure chercheuse CEA Cadarache	Examinatrice

Département FEDORA – INSA Lyon - Ecoles Doctorales – Quinquennal 2016-2020

SIGLE	ECOLE DOCTORALE	NOM ET COORDONNEES DU RESPONSABLE
CHIMIE	CHIMIE DE LYON http://www.edchimie-lyon.fr Sec. : Renée EL MELHEM Bât. Blaise PASCAL, 3e étage secretariat@edchimie-lyon.fr INSA : R. GOURDON	M. Stéphane DANIELE Institut de recherches sur la catalyse et l'environnement de Lyon IRCELYON-UMR 5256 Équipe CDFA 2 Avenue Albert EINSTEIN 69 626 Villeurbanne CEDEX directeur@edchimie-lyon.fr
E.E.A.	ÉLECTRONIQUE, ÉLECTROTECHNIQUE, AUTOMATIQUE http://edeea.ec-lyon.fr Sec. : M.C. HAVGOUDOUKIAN ecole-doctorale.eea@ec-lyon.fr	M. Gérard SCORLETTI École Centrale de Lyon 36 Avenue Guy DE COLLONGUE 69 134 Écully Tél : 04.72.18.60.97 Fax 04.78.43.37.17 gerard.scorletti@ec-lyon.fr
E2M2	ÉVOLUTION, ÉCOSYSTÈME, MICROBIOLOGIE, MODÉLISATION http://e2m2.universite-lyon.fr Sec. : Sylvie ROBERJOT Bât. Atrium, UCB Lyon 1 Tél : 04.72.44.83.62 INSA : H. CHARLES secretariat.e2m2@univ-lyon1.fr	M. Philippe NORMAND UMR 5557 Lab. d'Ecologie Microbienne Université Claude Bernard Lyon 1 Bâtiment Mendel 43, boulevard du 11 Novembre 1918 69 622 Villeurbanne CEDEX philippe.normand@univ-lyon1.fr
EDISS	INTERDISCIPLINAIRE SCIENCES-SANTÉ http://www.ediss-lyon.fr Sec. : Sylvie ROBERJOT Bât. Atrium, UCB Lyon 1 Tél : 04.72.44.83.62 INSA : M. LAGARDE secretariat.ediss@univ-lyon1.fr	Mme Emmanuelle CANET-SOULAS INSERM U1060, CarMeN lab, Univ. Lyon 1 Bâtiment IMBL 11 Avenue Jean CAPELLE INSA de Lyon 69 621 Villeurbanne Tél : 04.72.68.49.09 Fax : 04.72.68.49.16 emmanuelle.canet@univ-lyon1.fr
INFOMATHS	INFORMATIQUE ET MATHÉMATIQUES http://edinfomaths.universite-lyon.fr Sec. : Renée EL MELHEM Bât. Blaise PASCAL, 3e étage Tél : 04.72.43.80.46 infomaths@univ-lyon1.fr	M. Luca ZAMBONI Bât. Braconnier 43 Boulevard du 11 novembre 1918 69 622 Villeurbanne CEDEX Tél : 04.26.23.45.52 zamboni@maths.univ-lyon1.fr
Matériaux	MATÉRIAUX DE LYON http://ed34.universite-lyon.fr Sec. : Stéphanie CAUVIN Tél : 04.72.43.71.70 Bât. Direction ed.materiaux@insa-lyon.fr	M. Jean-Yves BUFFIÈRE INSA de Lyon MATEIS - Bât. Saint-Exupéry 7 Avenue Jean CAPELLE 69 621 Villeurbanne CEDEX Tél : 04.72.43.71.70 Fax : 04.72.43.85.28 jean-yves.buffiere@insa-lyon.fr
MEGA	MÉCANIQUE, ÉNERGÉTIQUE, GÉNIE CIVIL, ACOUSTIQUE http://edmega.universite-lyon.fr Sec. : Stéphanie CAUVIN Tél : 04.72.43.71.70 Bât. Direction mega@insa-lyon.fr	M. Jocelyn BONJOUR INSA de Lyon Laboratoire CETHIL Bâtiment Sadi-Carnot 9, rue de la Physique 69 621 Villeurbanne CEDEX jocelyn.bonjour@insa-lyon.fr
ScSo	ScSo* http://ed483.univ-lyon2.fr Sec. : Viviane POLSINELLI Brigitte DUBOIS INSA : J.Y. TOUSSAINT Tél : 04.78.69.72.76 viviane.polsinelli@univ-lyon2.fr	M. Christian MONTES Université Lyon 2 86 Rue Pasteur 69 365 Lyon CEDEX 07 christian.montes@univ-lyon2.fr *ScSo : Histoire, Géographie, Aménagement, Urbanisme, Archéologie, Science politique, Sociologie, Anthropologie

Remerciements

Ce travail de thèse a été réalisé entre différents laboratoires. Toute l'étude de modélisation numérique a été effectuée au sein du Laboratoire de Simulation du Combustible (LSC) du CEA Cadarache (DEN/DEC/SESC). Le travail sur matériau modèle de combustible a été réalisé au laboratoire MATEIS de l'INSA de Lyon, entre l'équipe SNMS et l'équipe CERA. Enfin, l'étude expérimentale sur le combustible a été effectuée au Laboratoire de Caractérisation et d'étude des Propriétés des Combustibles du CEA Cadarache (DEN/DEC/SA3E).

Je remercie tout d'abord les rapporteurs de cette thèse, Thomas Pardoën et Eric Martin, pour avoir examiné mon manuscrit et avoir apporté leurs remarques et leur expertise. Je remercie également Claudie Josse et Raphaël Estevez d'avoir accepté de faire partie du jury.

Je voudrais remercier tout particulièrement mon directeur de thèse, Sylvain Meille, qui m'a énormément appris sur bien des sujets tout au long de ces trois ans ; mais aussi mes autres encadrants de thèse, Cyril Langlois, Jean-Marie Gatt et Isabelle Zacharie-Aubrun. J'ai eu la chance d'avoir une équipe d'encadrement avec une grande disponibilité, une forte implication dans le projet, mais aussi très sympathique.

Je remercie également les partenaires industriels, EDF et Framatome, qui ont en partie financé ce projet, mais également suivi ce travail.

Pour tout le travail expérimental sur les microscopes, je remercie Armel Descamp-Mandine pour sa formation efficace et dynamique sur le FIB. Je remercie également grandement les deux « monsieurs FIB », Thierry Douillard à MATEIS, et Thierry Blay au CEA, pour leurs conseils et leur aide sur l'utilisation de ce type de microscope. Enfin, je voudrais aussi remercier Smail Chalal, de Carl Zeiss, pour ses précieux conseils de microscopie.

Pour la partie modélisation numérique, je suis reconnaissant pour l'aide de mes anciens co-bureaux, c'est-à-dire Thomas Catterou et Luc Portelet, notamment sur l'utilisation du logiciel Cast3m. Je voudrais également remercier Bruno Michel pour le temps qu'il m'a consacré pour m'aiguiller et me conseiller sur les problématiques de modélisation numérique.

En ce qui concerne la partie indentation, je remercie fortement Nathalie Leroux-Payraudeau pour sa précieuse aide technique. Je suis aussi très reconnaissant de l'aide de Nicolas Tarsien et Xavière Ittis pour la sollicitation mécanique du combustible vierge.

Je remercie également les nombreuses personnes du CEA qui ont pu m'épauler dans ce travail de thèse, Virginie Basini et Jérôme Lamontagne pour l'encadrement, mais également Jean Noiro, Christelle Nonon et Carole Valot pour leurs conseils et corrections en ce qui concerne les communications scientifiques.

Je voudrais également grandement remercier l'ensemble du personnel administratif ; Antonia Riccobene, Sandrine Gonnet, Alexandra Podgourskaia, Corinne Payen et Lilianne Quillot côté MATEIS, et Corinne Farnaud et Patricia Lecluyse côté CEA ; qui ont été un soutien très important au quotidien.

Finalement, je voudrais bien évidemment remercier l'ensemble de mes collègues des quatre équipes avec lesquelles j'ai pu travailler, pour la discussion scientifiques, les discussions moins scientifiques, mais également pour tous les bons moments passés qui ont rendu particulièrement agréables ces trois années de thèse.

Table des matières

CHAPITRE I.....	5
I-1. Les chiffres du nucléaire [1].....	7
I-2. Le REP : Réacteur à Eau Pressurisée	8
I-3. Le combustible nucléaire [3].....	9
I-3.1. Présentation	9
I-3.2. Comportement en situation nominale.....	9
I-3.3. Comportement en situation incidentelle de transitoire de puissance.....	11
I-3.4. Comportement en situation accidentelle [7][8].....	12
I-4. Modélisation numérique du comportement du combustible.....	13
I-4.1. La modélisation multi-physique [9].....	13
I-4.2. La modélisation de la rupture du combustible	14
I-5. Positionnement de la thèse	15
I-5.1. Problématique.....	15
I-5.2. Objectifs	16
CHAPITRE II.....	17
II-1. Propriétés mécaniques à la rupture des céramiques dans le domaine fragile	19
II-1.1. Résistance à la rupture des céramiques.....	19
II-1.2. Concept d'intensité de contraintes	21
II-1.3. Critère énergétique	22
II-1.4. Stabilité de la fissure [19].....	24
II-1.5. Méthodes numériques de calcul de la ténacité par la méthode des éléments finis.....	25
II-2. Méthodes expérimentales courantes de mesure des propriétés en rupture des céramiques	26
II-2.1. Mesure de contrainte à rupture [36]	26
II-2.2. Mesure de ténacité	27
II-2.3. Indentation.....	30
II-2.4. Paramètres pouvant influencer les mesures de ténacité.....	34
II-3. Méthodes expérimentales transposées à l'échelle microscopique pour mesurer les propriétés à la rupture des matériaux.....	37
II-3.1. Différentes géométries d'éprouvettes	37
II-3.2. Présentation des essais de flexion sur micro-poutres usinées au <i>FIB</i>	39
II-3.3. Préparation des micro-éprouvettes de flexion	42
II-3.4. Fabrication d'entailles	44
II-3.5. Sollicitation mécanique des micro-éprouvettes	48
II-4. Conclusion	51
CHAPITRE III.....	53
III-1. Données préliminaires	55
III-1.1. Choix du matériau	55
III-1.2. Données bibliographiques sur la zircone cubique.....	57
III-1.3. Résultats d'essais d'indentation [112]	59
III-2. Indentation	62
III-2.1. Echantillons et méthodes.....	62

III-2.2.	Essais Berkovich sur monocristal	65
III-2.3.	Essais Vickers sur monocristal	73
III-2.4.	Bilan.....	77
III-3.	Flexion de micro-éprouvettes	79
III-3.1.	Matériau et préparation des échantillons.....	79
III-3.2.	Fabrication des éprouvettes	79
III-3.3.	Essais mécaniques de flexion	84
III-3.4.	Méthodes de calcul des propriétés mécaniques d'intérêt.....	86
III-3.5.	Résultats.....	93
III-3.6.	Discussion	97
III-3.7.	Bilan.....	102
III-4.	Conclusion.....	104
CHAPITRE IV	105	
IV-1.	Données de la littérature	107
IV-1.1.	Le combustible vierge	107
IV-1.2.	Le combustible irradié.....	110
IV-1.3.	Bilan.....	112
IV-2.	Indentation	113
IV-2.1.	Résultats d'indentation Vickers.....	113
IV-2.2.	Résultats d'indentation Berkovich	116
IV-2.3.	Discussions	119
IV-2.4.	Bilan.....	123
IV-3.	Flexion de micro-éprouvettes	124
IV-3.1.	Matériaux et préparations	124
IV-3.2.	Flexion de micro-éprouvettes sur combustible UO_2^{st} vierge	128
IV-3.3.	Flexion de micro-éprouvettes sur combustible UO_2^{dc} irradié.....	136
IV-3.4.	Discussions	146
IV-3.5.	Bilan.....	153
IV-4.	Conclusion.....	155
CHAPITRE V	157	
V-1.	Nano-indentation	159
V-2.	Flexion de micro-éprouvettes.....	160
V-3.	Complémentarité des techniques	162
Références.....	163	
FOLIO ADMINISTRATIF	171	

Préambule

Actuellement, le nucléaire joue une position centrale dans la stratégie énergétique française. Le Réacteur à Eau Pressurisée (REP) est l'unique type de réacteur présent en France. Le combustible utilisé dans les REP est le plus souvent une céramique d'oxyde d'uranium UO_2 . Sous irradiation, les contraintes thermomécaniques induites par la différence de température entre le centre et la périphérie des pastilles provoquent rapidement leur fracturation en plusieurs morceaux millimétriques. Dans des situations incidentelles ou accidentelles, une fragmentation fine du combustible est observée dans les pastilles. Ces fissurations, générées dans les différentes situations de fonctionnement, nécessitent d'être prises en compte dans les codes de calcul utilisés pour modéliser le comportement du combustible sous irradiation.

Pour cela, il est important de connaître les propriétés à la rupture des combustibles, mais aussi leurs évolutions avec l'irradiation. Cependant, à cause de l'état de fracturation des pastilles, induite par l'irradiation, il est actuellement impossible de mesurer ces propriétés avec des méthodes conventionnelles. La seule solution envisageable est la réduction d'échelle des essais mécaniques dans le but de sonder localement la matière dans les fragments millimétriques du combustible.

De cette problématique est née en 2012 une collaboration entre le CEA, EDF, Framatome et l'Université de Lyon (INSA-Lyon), qui, jusqu'à maintenant, a principalement porté sur l'étude d'essais de nano-indentation. Il avait été conclu que cette méthode avait besoin d'être optimisée et idéalement comparée avec une autre. Ce travail de thèse s'inscrit donc dans la continuité de ce partenariat, et a pour objectif principal la mise en place de méthodes, et/ou l'adaptation d'essais existants, permettant de mesurer les propriétés à la rupture locales du combustible dans le domaine fragile, après irradiation en réacteur.

Ce document est divisé en quatre parties :

- La première partie pose le contexte industriel et présente quelques chiffres sur l'industrie nucléaire en France. Ensuite, le fonctionnement du réacteur à eau pressurisée est présenté, ainsi que les caractéristiques du combustible et la modélisation de ses propriétés. Cela conduit à la description du positionnement et de la problématique de ce travail de thèse.
- Le second chapitre développe tout d'abord la théorie de la rupture pour des matériaux fragiles, avant de décrire les moyens expérimentaux couramment utilisés à l'échelle macroscopique pour mesurer les paramètres de rupture. Ensuite, différentes méthodes de mesures par des essais de micromécanique sont présentées, et une méthode adaptée aux contraintes des combustibles irradiés est choisie : la flexion de micro-éprouvettes. Une analyse bibliographique de cette méthode est finalement développée pour préparer sa mise en place.
- La troisième partie est dédiée à l'application et à l'ajustement des essais micromécaniques choisis, sur un matériau modèle de combustible. Ils incluent la nano-indentation, dont l'étude avait déjà été initiée avant ce travail de thèse, et la flexion de micro-éprouvettes. Les résultats obtenus, en regard des conditions expérimentales, sont discutés et comparés à des mesures de la littérature afin d'en éprouver la fiabilité.
- Le dernier point traite de l'application de ces essais à des combustibles, en tenant compte des conclusions tirées de la partie précédente. Une première campagne d'essais est réalisée sur du combustible vierge, un matériau aux propriétés connues et à la microstructure contrôlée, avant de finalement réaliser les essais sur du combustible irradié.

CHAPITRE I

CONTEXTE INDUSTRIEL ET POSITIONNEMENT DE LA THESE

Ce chapitre présente le contexte industriel et positionne le sujet de ce travail de thèse. Quelques chiffres sont tout d'abord donnés sur la production électrique par la voie nucléaire, ce qui permet de la situer par rapport à la production française et internationale. Puis, après une brève présentation du fonctionnement du Réacteur à Eau Pressurisée (REP), le combustible, son comportement ainsi que sa fissuration dans les différents modes de fonctionnement du réacteur sont décrits. Ensuite, une présentation de la modélisation numérique du combustible, et plus particulièrement de sa fissuration, est donnée. Tous ces éléments permettent d'introduire la problématique de cette thèse, qui est de mesurer les propriétés à la rupture des combustibles irradiés afin d'alimenter les codes de simulation numérique décrivant le comportement du combustible en réacteur.

I-1. Les chiffres du nucléaire [1]

La réduction des émissions de gaz à effet de serre est actuellement au cœur des enjeux liés au changement climatique, et à ce compte elle fait du nucléaire une composante essentielle du mix énergétique de demain. En effet, la production d'électricité par cette voie n'émet, en soi, pas de gaz à effet de serre. Si le cycle de vie complet est pris en compte (transports, construction des centrales, cycle amont du combustible...), elle émet environ 4 g équivalent CO₂ par kWh d'électricité produite (contre environ 900 g/kWh pour la combustion du charbon et environ 500 g/kWh pour le gaz). En France, grâce à l'énergie nucléaire et hydraulique, l'électricité est à 96% décarbonnée et émet en moyenne 22 g de CO₂ par kWh d'électricité produite, contre une moyenne de 275 g/kWh pour les principaux fournisseurs d'électricité européens.

La filière nucléaire est la première source d'électricité produite et consommée en France, elle représente 77% de sa production (*Figure I-1*). Le parc français est constitué de 58 réacteurs REP (Réacteur à Eau Pressurisée), de puissances différentes : 4 réacteurs de 1450 MW, 20 réacteurs de 1300 MW et 34 réacteurs de 900 MW.

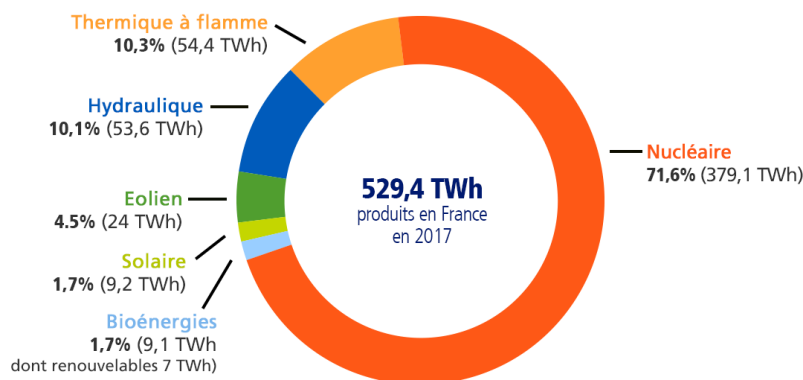


Figure I-1 : Part du nucléaire dans la production française d'électricité en 2017. Statistiques de l'électricité en France en 2017, du Réseau de Transport d'Electricité [1].

Dans le monde, l'industrie nucléaire pour la production électrique est présente dans 30 pays, et est répartie en tout en 437 réacteurs actifs. Cette voie de production demande un haut niveau technologique, et donc n'est présente que dans des pays industrialisés. Elle est la troisième source de production d'électricité et représente 10% de la production mondiale (*Figure I-2*). Celle-ci est encore largement dominée par le thermique à flamme, c'est à dire la combustion de charbon, gaz et pétrole, et la production électrique dans le monde émet en moyenne 525 g de CO₂ par kWh d'électricité produite.

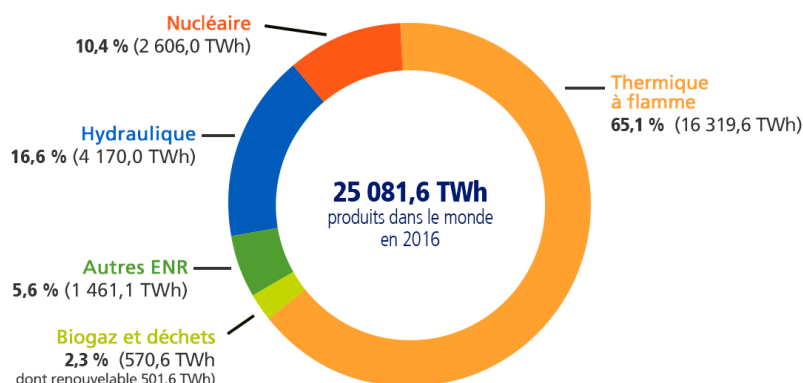


Figure I-2 : Part du nucléaire dans la production mondiale d'électricité en 2016. Statistiques de l'International Energie Agency [1].

I-2. Le REP : Réacteur à Eau Pressurisée

La totalité des réacteurs en France est de type REP (Réacteur à Eau Pressurisée). C'est également la filière la plus répandue au monde, représentant près de 55% des réacteurs installés [1]. Le principe de fonctionnement global est le suivant (Figure I-3) :

- Dans la cuve du réacteur sont placés les crayons combustibles, c'est à dire des pastilles de combustible nucléaire insérées dans une gaine en alliage de zirconium. Ce combustible, siège de la réaction de fission nucléaire, produit une grande quantité d'énergie thermique.
- Le circuit primaire contient le fluide caloporteur qui permet le transport de la chaleur produite par le combustible vers le générateur de vapeur. Le fluide utilisé dans le cas d'un REP est de l'eau liquide, qui a un double rôle. En effet, l'eau est le caloporteur mais aussi le modérateur de la réaction, c'est-à-dire qu'elle ralentit les neutrons, qui pourront alors participer plus facilement à l'entretien de la réaction nucléaire.
- Le circuit secondaire est constitué d'eau partiellement vaporisée qui circule grâce à des pompes. Cette vapeur permet la mise en mouvement de turbines reliées à un alternateur qui produit alors l'électricité distribuée sur le réseau électrique.
- Le circuit de refroidissement, dans lequel circule de l'eau froide provenant de la mer ou d'un cours d'eau, a pour rôle de refroidir l'eau du circuit secondaire dont une partie de la chaleur n'a pas été convertie en électricité. Avant d'être rejetée, l'eau de refroidissement de ce circuit tertiaire est parfois refroidie au contact de l'air dans des tours aéroréfrigérantes.

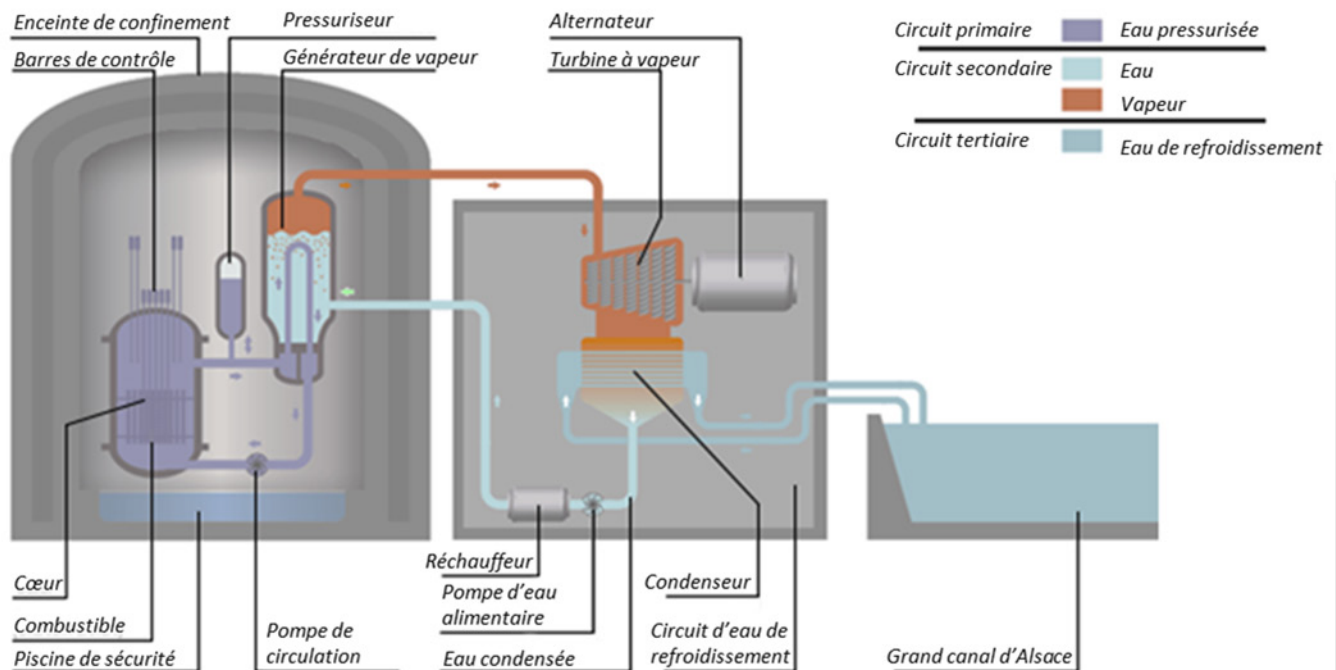


Figure I-3 : Principe de fonctionnement d'un Réacteur à Eau Pressurisée (ici de Fessenheim) [2].

I-3. Le combustible nucléaire [3]

I-3.1. Présentation

Le combustible nucléaire est constitué de matière fissile, qui produit de l'énergie par fission de ses noyaux (on parle de combustible bien que ce ne soit pas une réaction de combustion qui soit mise en jeu). Dans le cas de réacteurs à eau ordinaire, le combustible est une céramique, sous forme d'un oxyde polycristallin UO_2 . Le combustible est faiblement enrichi en isotope U^{235} fissile (entre 3% et 5%) et présente également d'autres isotopes lourds non fissiles qui le deviennent par capture neutronique au cours de l'irradiation [4]. L' UO_2 est mis en forme en pastilles de rayon égal à 4,1 mm et de hauteur de l'ordre de 13,5 mm, obtenues par frittage d'une poudre d' UO_2 , le plus souvent à 1700°C pendant 4h (Figure I-4).



Figure I-4 : De gauche à droite : poudre d' UO_2 , pastille crue de combustible, et pastille de combustible frittée [5].

Les pastilles de combustible sont empilées dans une gaine étanche en alliage de zirconium d'environ 4 m de long, qui constitue donc la première barrière de confinement du combustible. De l'hélium gazeux est introduit dans la gaine, autour des pastilles, sous une pression d'environ 25 bars. L'ensemble {pastilles + gaine} constitue un des crayons combustibles, qui sont ensuite regroupés en un faisceau, appelé assemblage combustible (Figure I-5). Le cœur du réacteur est constitué de plusieurs assemblages. L'eau liquide du circuit primaire est au contact de cet assemblage sous une pression de 155 bars.

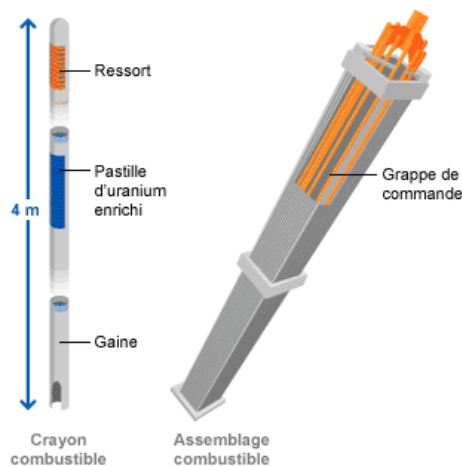


Figure I-5 : Crayon et assemblage de combustible [1].

I-3.2. Comportement en situation nominale

Le principal phénomène intervenant dans le combustible est la fission des noyaux lourds, produisant de nombreux produits de fission, dont l'énergie cinétique est dissipée sous forme de chaleur au sein du matériau. Le combustible oxyde présente une conductivité thermique peu élevée (de l'ordre de $4,5 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ à 450°C et $2 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ à 1500°C), qui diminue au cours de l'irradiation. La chaleur produite étant évacuée vers la gaine par conduction, il existe un fort gradient de température entre le centre de la pastille et sa périphérie. En fonctionnement nominal, la température à cœur est de l'ordre de 1000°C et de l'ordre de 450°C en périphérie.

Le combustible est fragile en traction jusqu'à 900°C, et la différence de dilatation thermique entre le cœur de la pastille et sa périphérie induit des contraintes de traction en bord de pastille qui dépassent la résistance à la rupture du matériau. Ainsi, il se forme une fissuration importante dès la première montée en puissance dans le réacteur, et après retour à froid, la pastille exhibe de grandes fissures traversantes qui la divisent en quelques fragments millimétriques (*Figure I-6*). Ensuite l'irradiation poursuit la fissuration des fragments ainsi formés.

Sous l'effet des contraintes d'origine thermique, la pastille prend une forme de « diabolo » (*Figure I-6*). Elle subit également des changements de volume, provoqués par plusieurs phénomènes. Le combustible se densifie à cause de produits de fission éjectés, très énergétiques, qui interagissent avec les pores et font disparaître la microporosité de fabrication. En parallèle, un phénomène de gonflement est induit par la réaction nucléaire : la fission entraîne la division d'un atome lourd en deux atomes de volume cumulé plus grand. Tous les produits de fission ainsi créés ne participent pas de la même manière au gonflement, selon la phase formée (précipités oxydes, précipités métalliques ou gaz de fission (Xe, Kr)) ou selon la position qu'ils occupent dans la matrice.

La combinaison de ces effets antagonistes entraîne d'abord une contraction du matériau à faible taux de combustion. Ensuite, seul le gonflement agit, et finit par prendre le dessus, la densité apparente des pastilles atteint alors de nouveau la valeur initiale, puis devient inférieure à celle-ci pour des taux de combustion plus importants. Le gonflement du combustible, et la diminution du diamètre de la gaine à cause du fluage induit par la pression du caloporteur et par le flux de neutrons, conduisent peu à peu à la fermeture du jeu combustible/gaine. Au niveau des points de contact entre la céramique oxyde et la gaine, se forme, par diffusion d'oxygène, une couche de zircone interne qui entraîne un accrochage entre la pastille et la gaine. Lorsque le contact est complet, à cause du gonflement des pastilles, le diamètre de la gaine augmente à nouveau.

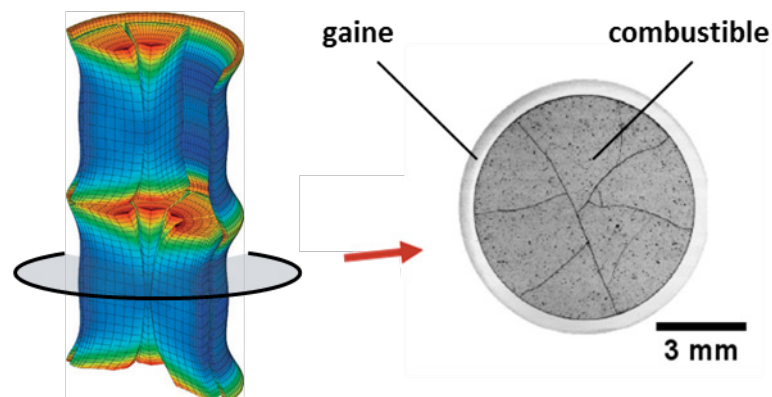


Figure I-6 : Modélisation par le logiciel ALCYONE de la déformation d'un crayon combustible (mise en diabolo) et fracturation du combustible observée sur une coupe radiale, au microscope optique, après utilisation en réacteur [3].

Dès lors que le combustible est mis en service, il relâche des produits de fission gazeux, essentiellement du xénon et du krypton, qui se mettent dans les volumes libres du crayon. En début d'irradiation, ce relâchement est principalement dû aux fissions produites à proximité de surfaces libres. En effet, les produits de fission sont expulsés à quelques microns du lieu de la réaction, avant d'être stoppés dans le combustible. Si la fission s'est faite à proximité d'une surface libre, des gaz sont relâchés dans le crayon. Ils sont soit formés lors de cette fission, soit déjà présents à proximité et entraînés par les produits de la fission. Le volume de gaz ainsi libéré croît avec l'irradiation, puisque le nombre de produits de fission et de surfaces libres augmentent. Pour des durées d'irradiation plus importantes, le taux de relâchement augmente plus vite avec l'irradiation car des phénomènes de diffusion à travers les grains et les joints de grains sont également mis en jeu.

Il a été montré que des bulles de tailles nanométriques existent même pour des faibles taux de combustion, contenant principalement du krypton et du xénon à forte pression (plusieurs GPa). Pour des températures élevées, la diffusion accélérée des gaz de fission entraîne la formation de plus grosses bulles, qui deviennent alors visibles au microscope électronique à balayage. La température limite d'observation de telles bulles diminue largement avec l'irradiation, ce qui fait qu'un combustible irradié en réacteur, pour des taux importants de combustion, présente une zone riche en bulles visibles au centre des pastilles. Ces zones contiennent également de nombreux précipités métalliques (*Figure I-7 - a*).

La diffusion des gaz de fission à travers les grains entraîne leur accumulation sur les joints de grains, qui sont eux-mêmes des chemins privilégiés de diffusion (*Figure I-7 - b*). C'est d'ailleurs comme cela qu'une grande partie des gaz de fission est relâchée dans les volumes libres du crayon. Pour des températures d'utilisation plus élevées, comme par exemple dans le cas d'essais simulant une situation incidentelle, la diffusion et la coalescence des bulles sont plus importantes. Cela entraîne alors des bulles allongées et interconnectées le long des joints de grains triples (*Figure I-7 - c*).

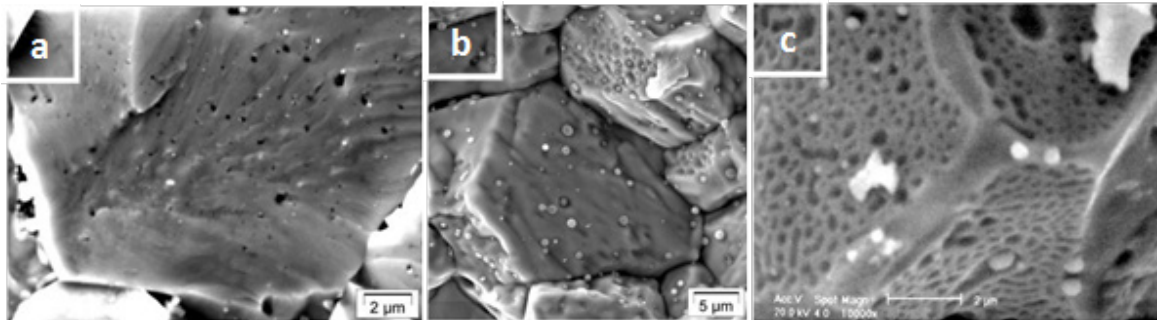


Figure I-7 : (a) Image de Microscopie Electronique à Balayage (MEB) de bulles et de précipités de fission intragranulaires pour un fort taux de combustion. (b) Image MEB de la surface des grains après irradiation, présentant des précipités et des bulles intergranulaires. (c) Image MEB d'un grain après une rampe de puissance, présentant une grande densité de bulles et de précipités au niveau des joints de grains, et des bulles interconnectées sur les joints triples [3].

I-3.3. Comportement en situation incidentelle de transitoire de puissance

Lors de la simulation d'un incident de fonctionnement dans un réacteur expérimental, il peut se produire des sauts importants d'énergie dégagée, appelés « transitoire de puissance ». Dans ces cas-là, la puissance croît, et la température peut atteindre jusqu'à 1500°C, voire 2000°C dans certains cas. Par dilatation thermique, l'effet « diabolique » est amplifié, générant des contraintes de traction supplémentaires en périphérie de pastille, qui se traduisent par une fissuration additionnelle, mais aussi par des contraintes plus importantes sur la gaine. La température entraîne également un relâchement de produits de fission agressifs pour la gaine, qui se fait préférentiellement au niveau des fissures présentes dans le combustible. Ainsi dans le plan interpastille ; où la dilatation et les contraintes sont maximales ; et au droit des fissures, un phénomène de corrosion sous contraintes peut amorcer une fissure dans la gaine (*Figure I-8*). D'autre part, le risque de rupture est réduit par des phénomènes bénéfiques qui diminuent le chargement de la gaine. Le gonflement du centre de la pastille tend à réarranger les fragments de la pastille, et ainsi à réduire l'effet « diabolique ». De plus, une forte fissuration additionnelle générée en périphérie de la pastille (*Figure I-8*), mais aussi le fluage accentué de la gaine, relaxent les contraintes qui s'y appliquent [6].

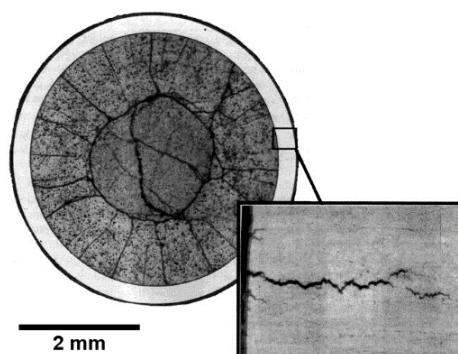


Figure I-8 : Micrographie optique d'une pastille UO₂ après irradiation en REP suivie d'une rampe de puissance en laboratoire [3]. Dans le combustible, une fissuration additionnelle au cas nominal est observée en périphérie. La fissure circonférentielle se forme au retour à froid, et marque la frontière entre la zone fragile et la zone viscoplastique du combustible. Dans la gaine, une amorce de rupture est visible.

Ce type de défaillances s'observe lors de rampes de puissance réalisées en réacteurs expérimentaux. Une rampe est un essai de laboratoire réalisé sur un crayon expérimental pré-irradié en réacteur de puissance, qui subit un transitoire de puissance éventuellement suivi d'un palier maintenu pendant par exemple 12 h ou jusqu'à rupture du crayon. Il y a donc un risque de rupture de la gaine, appelée Interaction Pastille Gaine (IPG), qui est pris en

compte dans l'exploitation des réacteurs. Pour éviter ce risque, les réacteurs sont limités en puissance maximale, mais aussi en manœuvrabilité en bornant la cinétique et la durée des transitoires. Cette démarche de sûreté est efficace, puisqu'aucune rupture de gaine par IPG n'a été observée dans les réacteurs français. Dans un objectif de réduction, et même peut être à terme, de suppression des contraintes imposées par l'IPG, des études sont menées sur les combustibles et les gaines pour rendre les combustibles insensibles aux risques d'IPG.

I-3.4. Comportement en situation accidentelle [7][8]

Une situation accidentelle a des conséquences bien plus graves qu'un incident, mais à une probabilité d'occurrence nettement plus faible. Parmi ces situations, deux accidents de référence sont standardisés et servent au dimensionnement des réacteurs : les accidents de type APRP (Perte de Réfrigérant Primaire) et de type RIA (*Reactivity Insertion Accident*).

Dans le cas de la perte de réfrigérant primaire, la réaction est arrêtée par la chute des barres de contrôle dans le réacteur, ces barres étant constituées de matériaux absorbants les neutrons. Il reste cependant la puissance résiduelle, chauffant progressivement les crayons. La gaine monte en température, la face externe s'oxyde au contact de la vapeur d'eau ambiante, libérant également de l'hydrogène. La gaine, sous l'effet de la pression interne, se ballonne et peut rompre. Elle peut également, fragilisée par la présence d'hydrogène, rompre par trempe, au contact de l'eau de secours qui est libérée dans le réacteur pour le refroidir. Dans les deux cas, des gaz de fission sont libérés dans l'eau du circuit primaire et des fragments du combustible peuvent alors aussi être éjectés, et ce particulièrement quand les combustibles ont des taux de combustion importants, car dans de tels cas le combustible est fortement fragmenté (*Figure I-9 - a*).

Dans le cas d'un accident de réactivité, dû par exemple à l'éjection d'une grappe de commande (ensemble de barres de contrôle), le combustible monte extrêmement vite à des températures très élevées. Il subit un accroissement brutal de volume, expliqué par un fort gonflement du matériau, mais aussi par la dilatation de gaz de fission stockés dans le matériau (*Figure I-7*), ce qui peut amener à l'ouverture des joints de grains (*Figure I-9 - b*). Les contraintes induites à la gaine risquent alors d'entraîner sa rupture. Les critères de sûreté mis en place imposent une enthalpie moyenne déposée dans le combustible à ne pas dépasser pour limiter l'énergie mécanique disponible, ainsi qu'une non-dispersion du combustible.

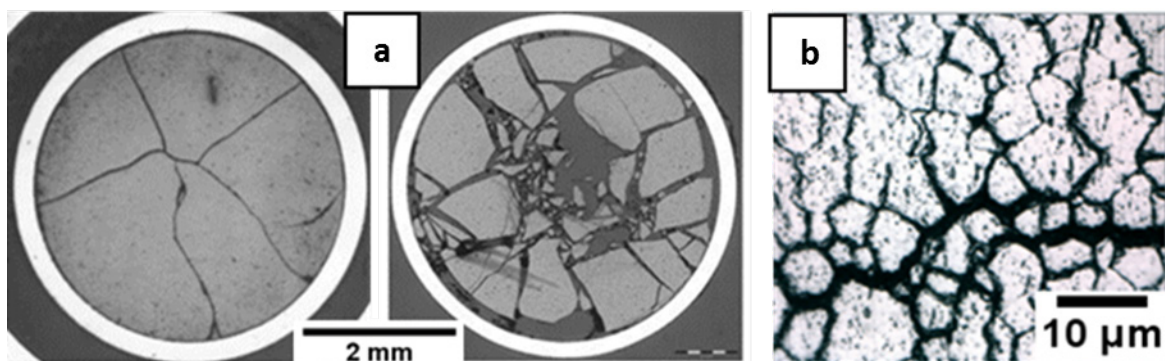


Figure I-9 : (a) Crayons expérimentaux après essais en laboratoire de type APRP [7]. (b) Micrographie optique du combustible après essais en réacteur d'essai de type RIA, avec fragmentation au niveau des joints de grains [3].

I-4. Modélisation numérique du comportement du combustible

I-4.1. La modélisation multi-physique [9]

L'ensemble des phénomènes physiques intervenant dans le réacteur est modélisé et regroupé dans des codes de calcul, dont un simule le comportement du combustible. Cette approche numérique est indispensable pour la recherche (compréhension) et le développement (conception de nouveaux combustibles). Elle permet de prédire le comportement du combustible lors de son utilisation en réacteur, que ce soit en situation nominale, ou bien en situations incidentelles ou accidentelles. La simulation numérique est d'ailleurs utilisée pour appuyer les dossiers de sûreté des réacteurs. Elle sert également à faire des calculs de grandeurs aussi bien locales que globales, et permet donc de comprendre et d'interpréter les mesures effectuées en réacteur ou bien par caractérisation post-irradiation.

De nombreux outils ont été développés pour modéliser le comportement des combustibles nucléaires : logiciels, lois et modèles de comportement, bases de données de résultats expérimentaux, méthodes numériques de résolution ou bien outils de pré- et post-traitement. Cet ensemble est regroupé dans la plateforme de simulation PLEIADES (Plateforme Logicielle pour les Eléments Irradiés dans les Assemblages, en Démonstration, en Expérimentation ou en Service), co-développée par le CEA et EDF. Au sein de PLEIADES, chaque filière de réacteurs donne lieu à une application logicielle dédiée, la filière REP étant gérée par l'application ALCYONE.

L'architecture éléments finis utilisée dans PLEIADES rend possible le choix de la dimension des calculs. Il va dépendre du problème traité, du temps alloué aux calculs, ainsi que de l'échelle modélisée, par exemple : à l'échelle du crayon (1D), de la pastille (2D) ou bien d'un des fragments (3D). A titre d'exemple, dans ce dernier cas, la modélisation permet de mettre en évidence que la contrainte de cisaillement induite à la gaine est maximale au niveau des interpastilles, en regard d'une fissure du combustible (*Figure I-10*), ce qui est d'ailleurs cohérent avec les observations expérimentales (*Figure I-8*).

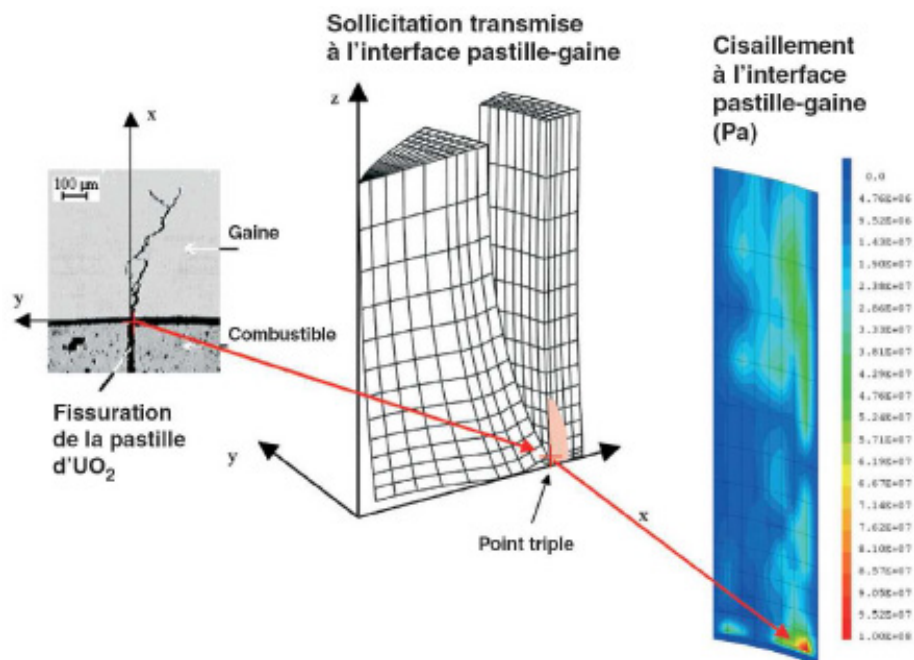


Figure I-10 : Modélisation des contraintes de cisaillement induites à la gaine à la fin d'un transitoire de puissance. Elle permet de localiser et de quantifier la contrainte maximale, utile dans la démarche de sûreté pour garantir ou non l'étanchéité de la gaine [3].

Une telle plateforme logicielle permet le couplage plus ou moins fort entre les différents modèles utilisés, et permet donc le couplage multi-physique. Ainsi, il est particulièrement utile de combiner les modèles de neutronique, thermo-hydraulique et de mécanique des crayons pour simuler notamment les situations accidentelles.

I-4.2. La modélisation de la rupture du combustible

Comme il a été vu précédemment, dans toutes les situations de fonctionnement, le combustible REP se fissure, et donc cette rupture du combustible se doit d'être prise en compte dans sa modélisation. En situation nominale, la pastille est modélisée en plusieurs fragments, puisqu'expérimentalement la pastille se fragmente dès la première montée en puissance. Dans le cadre de l'IPG, la modélisation montre que la fissuration additionnelle en périphérie de pastille peut participer à la réduction des contraintes appliquées à la gaine. Pour la modélisation des situations accidentelles, il est important de connaître les propriétés en rupture du combustible, et particulièrement de ses joints de grains (*Figure I-9 - b*).

Les modèles de fissuration couramment utilisés sont des modèles d'endommagement continu (*Figure I-11 - a*), de type « zone cohésive » [10]. C'est un modèle surfacique, utilisé dans le cas où la rupture est localisée en un endroit connu. Il peut être inclus dans une formulation par éléments finis en insérant des éléments spéciaux, de type joint. Le modèle est indépendant de la taille de maille, et les éléments de la zone peuvent être endommagés. A partir d'une contrainte seuil σ_c , dite critique, l'endommagement s'initie, ce qui relaxe les contraintes avec le déplacement δ des lèvres de la fissure. A partir d'un déplacement critique, l'élément est complètement rompu (*Figure I-11 - b*). Dans ce cas, l'aire sous la courbe représente l'énergie dissipée lors de la rupture de l'élément, et elle correspond au taux de restitution critique d'énergie élastique G_c , qui est directement relié à la ténacité du matériau K_{Ic} .

Ce type de modèle peut être transposé à des modèles volumiques, mais peut aussi être intégré et combiné à des lois de comportement classiques en adaptant le modèle pour remplacer le déplacement δ par une déformation ε [11] (*Figure I-11 - c*). L'avantage est qu'il peut être aisément intégré dans une formulation éléments finis, sans avoir recours à des éléments spéciaux (joints pour le modèle de zone cohésive). Par contre, l'indépendance au vis-à-vis du maillage n'est pas conservée, et il faut introduire la taille des éléments h dans la formulation du modèle [11]. Dans ce cas, l'aire sous la courbe contrainte-déformation est également liée à la ténacité du matériau, mais aussi à la taille de l'élément endommageable.

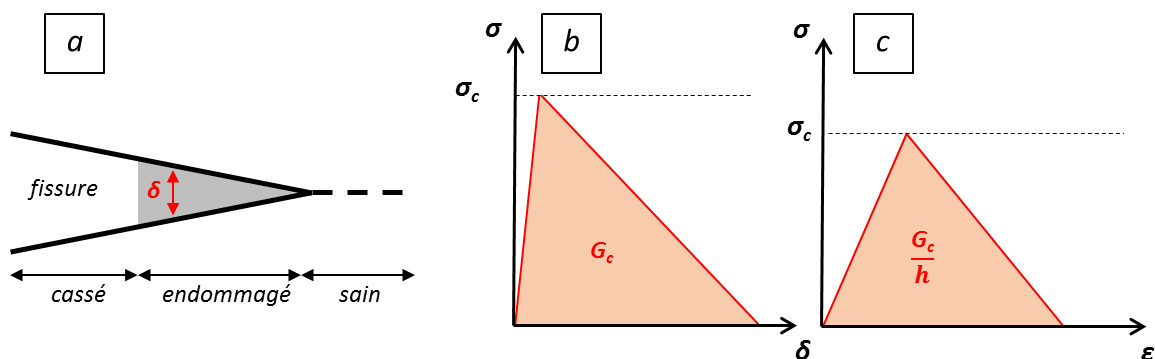


Figure I-11 : Schéma de la loi de comportement pour un modèle d'endommagement continu. (a) Schéma de l'endommagement progressif d'un élément. (b) Loi de comportement pour un modèle d'endommagement surfacique, la contrainte de traction T dans l'élément dépend du déplacement des lèvres de la fissure. (c) Loi de comportement pour un modèle d'endommagement décrite en contrainte et déformation. L'aire sous les courbes pour (b) et (c) est reliée à la ténacité du volume.

I-5. Positionnement de la thèse

I-5.1. Problématique

Il apparaît donc important d'alimenter les codes de calculs ALCYONE avec les propriétés à rupture du combustible, mais aussi de pouvoir quantifier leur évolution avec l'irradiation [11]. Dans le domaine fragile de la céramique, en périphérie de pastille, où la température est plus faible qu'au cœur, les données particulièrement importantes sont : la contrainte critique σ_c et le taux critique de libération d'énergie élastique G_c .

Ces deux données sont reliées à des propriétés mesurables : la contrainte à rupture σ_R du matériau et la ténacité K_{IC} . La ténacité est une donnée matériau, directement liée à G_c , cependant la contrainte à rupture dépend de la taille de l'éprouvette testée, et n'est *a priori* pas explicitement reliée à la contrainte critique. La mesure de contraintes à rupture est cependant intéressante, d'une part pour faire des mesures comparatives entre les différents combustibles, différentes zones d'une même pastille ou bien différents taux de combustion, et d'autre part elle peut permettre de remonter à σ_c par calcul.

Sur le matériau combustible vierge, c'est-à-dire avant la mise en service et donc l'irradiation, ces paramètres peuvent être, et ont déjà été, mesurés en utilisant des éprouvettes macroscopiques [12][13]. Cependant sur le combustible fissuré après irradiation, il est impossible d'usiner de telles éprouvettes (Figure I-12). Une solution est alors de diminuer l'échelle des essais pour éviter les défauts majeurs de la matière. Pour cela, la seule méthode applicable jusqu'à maintenant était la micro- ou la nano-indentation, qui permet d'estimer la ténacité [14] et d'approcher par le calcul la contrainte critique [13].

Cependant les mesures par indentation font l'objet de critiques en ce qui concerne la mesure absolue de ténacité [15]. Ces mesures sont en effet dépendantes de nombreux paramètres difficilement contrôlables (taille de grains, porosités, géométrie des fissures...) et doivent être idéalement calibrées par des méthodes standards.

Finalement, il est apparu utile de développer une autre méthode de caractérisation mécanique pour compléter ces essais d'indentation. Pour mesurer les propriétés intrinsèques du matériau irradié, une solution est de s'inspirer d'essais conventionnels et macroscopiques, de flexion par exemple, et de réduire l'échelle de ces essais pour aller travailler entre les défauts (fissures, bulles) du combustible (Figure I-12).

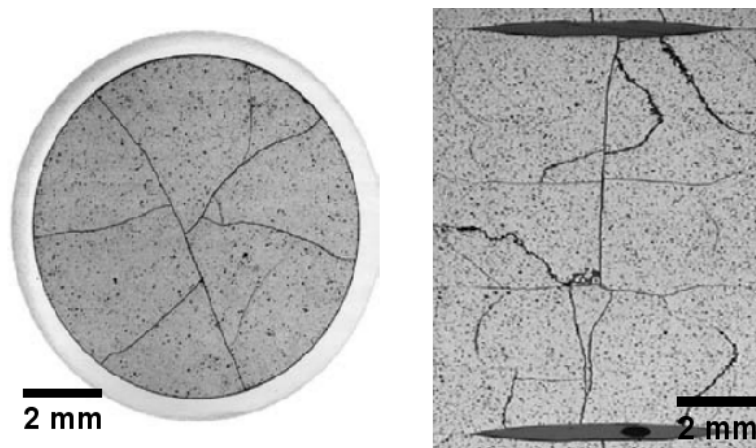


Figure I-12 : Macrographies optiques de pastilles de combustible polies après irradiation. (à gauche) coupe radiale ; (à droite) coupe axiale [3].

I-5.2. Objectifs

Ce travail de thèse a pour but d'établir des méthodes de mesure des données manquantes de propriétés à la rupture du combustible irradié dans le domaine fragile. D'une part, les travaux déjà existants portant sur des méthodes d'indentation sont complétés, d'autre part, une autre méthodologie de mesure est mise en place et étudiée. En réacteur et en fonctionnement nominal, la température d'une grande partie des pastilles de combustible reste inférieure à 900°C, et est donc dans le domaine fragile. Pour des raisons technologiques, les essais pour la mesure des propriétés à la rupture fragile seront réalisés à température ambiante. A cause de la fracturation du combustible sous irradiation, les essais mécaniques doivent être envisagés à l'échelle microscopique en s'appuyant sur des essais existants à l'échelle macroscopique.

Dans le chapitre II, une étude bibliographique est développée sur la détermination des propriétés en rupture de céramiques. Elle couvre différentes échelles d'essais, et permet notamment de définir une nouvelle méthode de mesure prometteuse pour le combustible : la flexion de micro-éprouvettes.

Dans le chapitre III, l'étude en nano-indentation, qui avait déjà été initiée avant ce travail de thèse, est poursuivie et complétée par la mise en place des essais de flexion de micro-éprouvettes. Ces deux méthodes sont étudiées sur un matériau modèle de combustible, aux propriétés connues, ceci afin de valider ou d'invalider les mesures effectuées.

Le chapitre IV décrit la mise en place et l'adaptation des essais micromécaniques sur des combustibles, vierges dans un premier temps, puis irradiés en REP. Une analyse et une discussion des résultats obtenus permet de mettre en avant les points forts et les limites de chacune des méthodes appliquées au combustible.

Enfin, dans le chapitre V, les conclusions générales de ce travail, ainsi que ses perspectives, sont présentées.

CHAPITRE II

REVUE BIBLIOGRAPHIQUE DE LA CARACTERISATION MECANIQUE DE LA RUPTURE DES CERAMIQUES

Ce chapitre est une revue bibliographique de la caractérisation mécanique de la rupture des céramiques. Le combustible nucléaire UO_2 est un matériau céramique, au comportement fragile pour des températures inférieures à $900^{\circ}C$. De plus, sa caractérisation doit se faire à l'échelle micrométrique, ce qui implique des méthodes d'essais et des équipements adaptés. Une approche théorique de la rupture des matériaux fragiles est donc tout d'abord exposée. Ensuite, les méthodes courantes de caractérisation macroscopique des paramètres de rupture sont décrites. Enfin, afin de mettre en place une nouvelle méthode d'essais micromécaniques, une étude bibliographique approfondie est réalisée sur le sujet. La première étape est d'étudier les diverses options d'essais disponibles, puis de choisir la plus adaptée. Deuxièmement, le fonctionnement des appareils nécessaires à la bonne compréhension de la veille réalisée est succinctement décrit. Ensuite, un tour d'horizon des méthodes de fabrication et de sollicitation de micro-éprouvettes est présenté. Les différentes astuces de préparation, biais possibles ou avérés dans les mesures, ou tout autre fait pouvant influencer sur les résultats sont relevés afin d'avoir la meilleure compréhension de l'essai possible. Finalement, à partir du bilan de cette étude bibliographique, des recommandations sont données pour la fabrication et la sollicitation des micro-éprouvettes réalisées dans ce travail de thèse.

II-1. Propriétés mécaniques à la rupture des céramiques dans le domaine fragile

La rupture des céramiques est généralement fragile sur une large gamme de température, c'est-à-dire que la rupture intervient après dépassement de la limite d'élasticité du matériau, sans déformation plastique. De ce fait leur comportement est souvent considéré comme élastique et linéaire jusqu'à rupture.

II-1.1. Résistance à la rupture des céramiques

Les céramiques sont des matériaux cristallins avec des liaisons interatomiques de type iono-covalentes. Dans le cas de liaisons ioniques majoritaires, comme c'est le cas pour la zircone ZrO_2 ou le dioxyde d'uranium UO_2 , les deux éléments du cristal ont des charges électriques opposées. Il en résulte un cristal dense, constitué d'un empilement d'ions métalliques avec les ions oxygènes dans les sites interstitiels [16]. Un matériau céramique présente donc, de par la nature des atomes qui la composent, des liaisons fortes entre ceux-ci, tandis qu'un matériau métallique a des liaisons plus faibles et des électrons délocalisés dans la structure [17]. Il en résulte pour les céramiques une faible mobilité des dislocations et donc une rupture immédiatement après le dépassement de la limite élastique (à température ambiante et jusqu'à des températures assez élevées), avec presque pas de déformation plastique, contrairement aux métaux (Figure II-1).

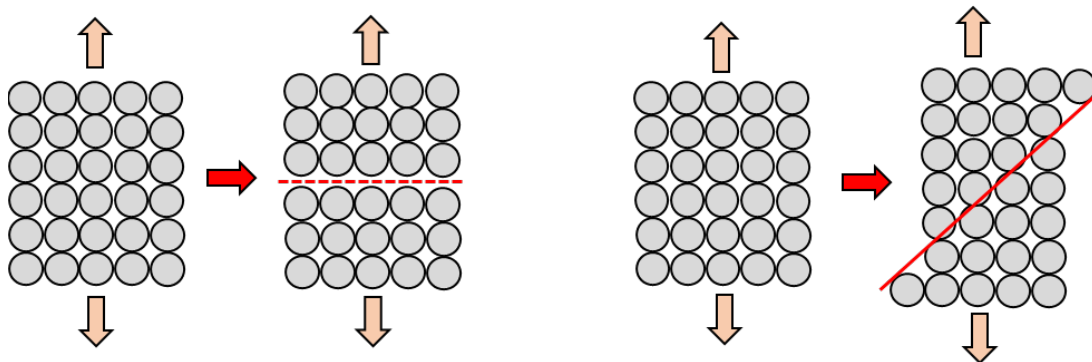


Figure II-1 : Schéma à l'échelle cristalline, lors d'une sollicitation en traction, du comportement : (à gauche) d'un matériau céramique idéal : rupture fragile après dépassement de la limite élastique ; (à droite) d'un matériau métallique : déformation ductile.

II-1.1.1. Résistance théorique du cristal

Une première approximation de la résistance du matériau consiste à considérer la résistance d'un cristal parfait. Orowan a proposé en 1949 [18] un modèle simple de la rupture fragile, qui permet d'estimer la contrainte à rupture théorique d'un cristal parfait par la relation (II-1) :

$$\sigma_{théo} \approx \sqrt{\frac{E \gamma}{a_0}} \quad (II-1)$$

Avec :

- E le module de Young du cristal.
- γ l'énergie de création par rupture de la nouvelle surface créée.
- a_0 la distance interatomique au repos.

Cependant, dans la grande majorité des cas, la contrainte à rupture des céramiques mesurée expérimentalement est inférieure de plusieurs ordres de grandeur à cette estimation [19].

Pour le dioxyde d'uranium UO_2 , c'est d'ailleurs le cas, la résistance théorique du cristal est estimée par l'équation (II-1) à 23 GPa ($E = 195$ GPa, $\gamma = 1,5$ J.m⁻², $a_0 = 5,47$ Å), contre environ 150 MPa pour la contrainte mesurée sur une éprouvette macroscopique [13][20]. Cette différence s'explique principalement par la présence de défauts dans le matériau qui sont des sites préférentiels d'amorçage de la rupture. Ces défauts peuvent être des porosités ou des microfissures, induites par le procédé de fabrication par exemple. La rupture n'est pas directement liée aux liaisons chimiques, mais aux hétérogénéités dans la microstructure qui abaissent drastiquement la résistance du matériau.

II-1.1.2. Résistance du matériau avec un défaut

Lors de la sollicitation en traction d'un élément présentant un défaut, ce dernier entraîne une concentration des contraintes à son immédiate proximité. Inglis *et al.* [21] ont modélisé un défaut par une ellipse de grand axe a et de petit axe b et ont calculé l'évolution de la contrainte de traction σ en fonction de la distance au défaut r . La contrainte maximale (au point A) (Figure II-2) est donnée par l'équation (II-2) :

$$\sigma_{max} = \sigma^{\infty} \left[1 + \frac{2a}{b} \right] \quad (II-2)$$

Ainsi, plus le défaut est acéré (rapport a sur b grand), plus la contrainte maximale est élevée. Dans ce cas, le facteur de concentration de contraintes K_t est habituellement utilisé ; il décrit la sur-contrainte autour du défaut : $K_t = \sigma_{max}/\sigma^{\infty}$ [22].

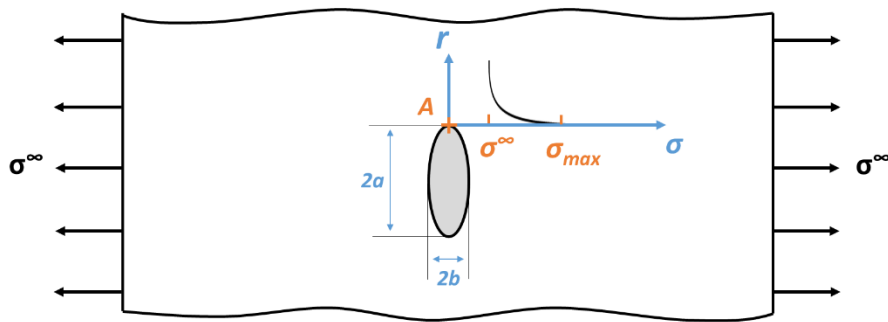


Figure II-2 : Schéma d'un solide présentant un défaut elliptique sollicité en traction, et répartition des contraintes autour de ce défaut (selon [21]).

Il devient alors évident que selon la taille, la distribution et la forme des défauts, la contrainte à rupture macroscopique du matériau peut varier considérablement. La dispersion des paramètres de rupture peut être étudiée par une approche statistique de la rupture.

II-1.1.3. Approche statistique de la rupture [23]

Weibull proposa en 1939 [24][25] une approche basée sur un modèle dit du maillon faible. C'est-à-dire que dans une structure (chaîne) composée de plusieurs sous-structures en série (chaînon), la rupture d'un des sous-éléments entraîne la ruine de toute la structure. La probabilité de rupture de la chaîne se définit donc en fonction de la probabilité de rupture de chacun des chaînons. La formulation générale de loi de Weibull s'écrit (II-3) :

$$P(\sigma, V) = 1 - e^{\left(-\frac{V}{V_0} \left(\frac{\sigma - \sigma_u}{\sigma_0} \right)^m \right)} \quad (II-3)$$

Avec :

- P la probabilité de rupture globale de la structure, pour une contrainte σ et un volume V donnés.
- m le module de Weibull. Il rend compte de la dispersion des valeurs de contrainte à rupture. Quand m est élevé, la dispersion est faible. En théorie si m est infini, tous les échantillons rompent pour la même contrainte.
- σ_u la contrainte seuil sous laquelle aucune rupture ne se produit. Pour les céramiques, elle est souvent prise nulle.
- σ_0 le paramètre de forme.
- V_0 le volume de référence (unitaire pour ajuster la dimension).

Le modèle de Weibull permet donc une approche statistique et macroscopique, qui prend en compte la présence de défauts dans la matière. La rupture interviendra sur le défaut le plus « critique ». Il n'est pas nécessairement le plus gros, car cela dépend aussi de la sollicitation subie par le défaut, et donc de sa position dans le matériau.

Pour une même probabilité de rupture entre deux éprouvettes de volume différent V_1 et V_2 , il vient (II-4) :

$$P(\sigma_1, V_1) = P(\sigma_2, V_2) \quad (II-4)$$

Ce qui implique l'égalité suivante (II-5) :

$$\left(\frac{\sigma_1}{\sigma_2}\right) = \left(\frac{V_1}{V_2}\right)^{-1/m} \quad (II-5)$$

m étant positif, si $V_1 < V_2$, alors $\sigma_2 < \sigma_1$. Finalement, plus le volume sondé est important, plus la probabilité d'avoir un défaut critique augmente, et donc plus la contrainte à rupture mesurée diminue.

Ainsi, la probabilité de rupture dépend de la taille de l'éprouvette et du champ de contraintes. Pour comparer cette probabilité d'un cas en traction à celui d'un cas en flexion, la notion de volume équivalent V_E est utilisée. V_E est défini comme le volume d'une hypothétique éprouvette, qui, quand elle est soumise à une contrainte de traction σ_{max} uni-axiale et homogène, a la même probabilité de rupture qu'une éprouvette de flexion de volume V [26].

II-1.2. Concept d'intensité de contraintes

II-1.2.1. Introduction à la mécanique de la rupture [22]

L'approche de la mécanique des milieux continus, qui assure la tenue des structures en utilisant une approche basée sur une contrainte maximale admissible, arrive rapidement à ses limites dès lors qu'une fissure est introduite. Une fissure est un défaut généralement de géométrie simple, défini comme plan, c'est-à-dire que ses deux lèvres sont très proches l'une de l'autre, se rejoignant en un bord anguleux. Selon l'équation (II-2), la contrainte tend vers l'infini en pointe de fissure, et donc l'application de la moindre contrainte, même infinitésimale, devrait entraîner la ruine du matériau. En réalité, ce n'est pas le cas car la pointe de fissure ne présente pas un rayon de courbure nul, et une zone plastifiée se forme en fond de fissure, même si elle est restreinte pour un matériau fragile. Malgré cela, la contrainte calculée reste très grande en fond de fissure. En fait, le concept de concentration de contraintes K_t (partie II-1.1.2) n'est plus applicable, et n'a plus de sens physique dans le cas d'une fissure.

La mécanique de la rupture a pour objet l'étude du comportement mécanique des fissures. Elle ne travaille plus avec la valeur locale de la contrainte, mais considère l'ensemble des champs de déplacements et de contraintes autour d'une fissure. Le facteur de concentration de contraintes K_t est généralement remplacé par le concept d'intensité de contraintes K , qui décrit l'ensemble de la singularité spatiale du champ de contraintes.

II-1.2.2. Mode d'ouverture de fissures

Le déplacement des lèvres de la fissure peut être décomposé en trois composantes, et à chacune d'elles est associé un mode élémentaire de rupture (Figure II-3). Ainsi, pour chaque mode, un facteur d'intensité de contraintes est défini : K_I , K_{II} et K_{III} . En général, les ruptures les plus contraignantes, qui s'initient pour les charges les plus faibles, se font selon le mode I, et donc la plupart des études de rupture se font selon celui-ci [27].

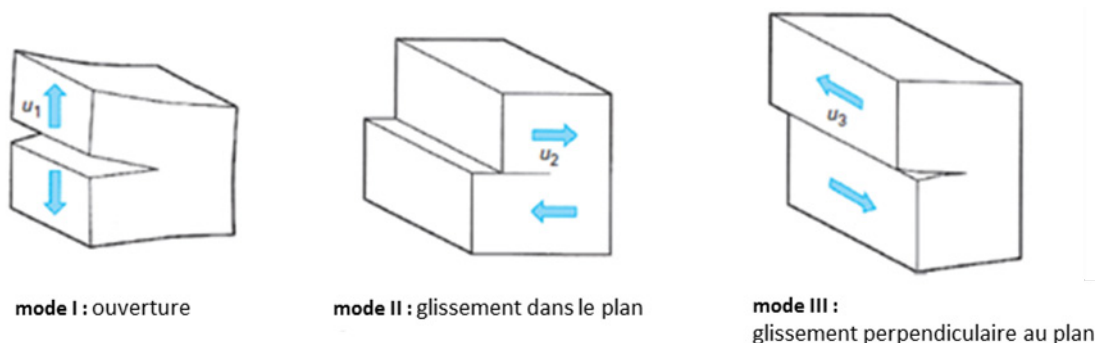


Figure II-3 : Les trois modes d'ouverture possibles d'une fissure [28].

II-1.2.3. Facteur d'intensité de contraintes K [28]

Irwin [29] a décrit les champs de contraintes, de déformations et de déplacements en fond de fissure. Soit le système de coordonnées défini à l'extrémité d'une fissure (Figure II-4). La fissure est supposée avoir un rayon de courbure ρ nul à son extrémité. Les contraintes tendent vers l'infini aux abords de cette extrémité, c'est-à-dire en fond de fissure, et varient en $1/\sqrt{r}$. Cette zone est appelée zone de singularité élastique, et les contraintes peuvent s'écrire sous la forme suivante (II-6) :

$$\sigma_{ij} = \frac{K}{\sqrt{2\pi r}} f_{ij}(\theta) \quad (II-6)$$

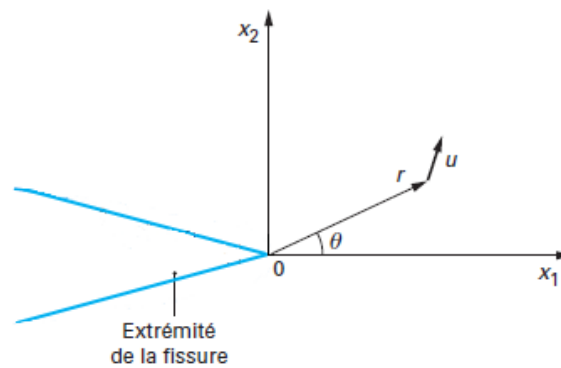


Figure II-4 : Définition des coordonnées à l'extrémité d'une fissure [28].

$f_{ij}(\theta)$ est une fonction de l'angle polaire θ par rapport à l'extrémité de la fissure. K est le facteur d'intensité de contraintes et détermine le niveau des contraintes au voisinage de l'extrémité de la fissure. K est fonction des conditions de chargement et de la géométrie de l'éprouvette. Ce facteur est donc très utile, en particulier lorsqu'il atteint sa valeur critique K_c , valeur pour laquelle la fissure se propage. Celle-ci est toujours la même pour un matériau donné, c'est une caractéristique du matériau, et elle est définie comme sa ténacité.

En mode I (Figure II-3), le facteur d'intensité de contraintes se met souvent sous la forme de (II-7) :

$$K_I = \alpha \sigma^\infty \sqrt{a} \quad (II-7)$$

Avec :
 α facteur de forme de la géométrie du solide.
 σ^∞ la contrainte dans le matériau normale au plan de fissure, loin de celle-ci.
 a la profondeur de fissure.

Pour des configurations connues, des formulaires donnent le facteur de forme, et donc le facteur d'intensité de contraintes, en fonction de la contrainte appliquée et de la profondeur de fissure [30]. Pour la configuration simple d'une fissure dans une plaque infinie en traction (Figure II-2 où le défaut est remplacé par une fissure), α vaut $\sqrt{\pi}$.

II-1.3. Critère énergétique

II-1.3.1. Définition du taux de restitution d'énergie G [28]

Griffith, vers les années 1920 [31], proposa une théorie de la rupture fragile basée sur des principes énergétiques. Elle est fondée sur l'idée que l'extension d'une fissure se produit lorsque l'énergie fournie est suffisante pour dépasser la résistance du matériau : il y a compétition entre l'énergie élastique restituée lors de la propagation d'une fissure et l'énergie dissipée par la création de nouvelles surfaces.

Soit le solide isolé $\{S\}$, composé d'un matériau élastique et linéaire, contenant une fissure d'aire A et soumis à un chargement global dont la résultante est la force F . P désigne l'énergie potentielle stockée dans la structure, composée de l'énergie potentielle des forces appliquées U et de l'énergie élastique emmagasinée E_{el} . dA désigne l'incrément de surface correspondant à l'extension de la fissure.

G est le taux de restitution de l'énergie élastique, aussi appelé taux de libération d'énergie, en J/m^2 , et est défini par (II-8) :

$$G = -\frac{dP}{dA} \quad (II-8)$$

L'énergie globale de $\{S\}$ est composée de :

- L'énergie potentielle P du système.
- L'énergie de surface $(S + 2A)\gamma_S$, avec S la surface externe du solide, A l'aire de la fissure et γ_S l'énergie surfacique du solide.
- Eventuellement l'énergie cinétique W_c , si la propagation de la fissure ne se fait pas de manière quasi-statique.

Le principe de conservation de l'énergie d'un système mécanique isolé implique que l'énergie totale du système est constante lors de la propagation de la fissure (II-9) :

$$dP + d(S + 2A)\gamma_S + dW_c = 0 \quad (II-9)$$

La surface externe du solide S est considérée comme invariante, et donc dS comme nulle (II-10) :

$$2\gamma_S + \frac{dW_c}{dA} = -\frac{dP}{dA} = G \quad (II-10)$$

L'énergie cinétique W_c éventuelle étant positive ou nulle, il vient (II-11) :

$$\begin{array}{llll} \text{si} & G > 2\gamma_S & \text{alors} & dA > 0 \\ \text{si} & G < 2\gamma_S & \text{alors} & dA < 0 \end{array} \quad (II-11)$$

La quantité $2\gamma_S$ est donc une valeur seuil, et est notée G_c : c'est le taux critique de restitution d'énergie. Ainsi, si G dépasse G_c , la fissure se propage. Inversement, si G est inférieur à G_c , en théorie la fissure se referme. En pratique, ce n'est pas le cas car la rupture est un processus irréversible.

Généralement, l'énergie G_c mesurée est plus importante que $2\gamma_S$ du fait que les matériaux n'ont pas un comportement purement élastique, mais présentent de la plasticité, ne serait-ce que très localisée en pointe de fissure pour les matériaux fragiles.

II-1.3.2. Expression du taux de restitution d'énergie G [27]

Le système $\{S\}$ est de nouveau considéré : soit F la résultante des forces appliquées à $\{S\}$ et u le déplacement de son point d'application. Il est possible de définir la souplesse C (appelée parfois complaisance) de la structure, par la relation (II-12) :

$$u = C F \quad (II-12)$$

L'énergie potentielle des forces extérieures U est (II-13) :

$$U = -F u \quad (II-13)$$

L'énergie élastique E_{el} emmagasinée pendant le chargement peut s'écrire de différentes manières (II-14) :

$$E_{el} = \frac{F u}{2} = \frac{1}{2} \frac{u^2}{C} = \frac{1}{2} C F^2 \quad (II-14)$$

Dans le cas d'un chargement à déplacement imposé, il vient les relations (II-15) :

$$\begin{aligned} dU &= -F du = 0 \\ dE_{el} &= d\left(\frac{1}{2} \frac{u^2}{C}\right) = -\frac{1}{2} F^2 dC \end{aligned} \quad (II-15)$$

Et donc G peut s'écrire (II-16) :

$$G = -\frac{dP}{dA} = -\frac{dU + dE_{el}}{dA} = \frac{1}{2} F^2 \frac{dC}{dA} \quad (II-16)$$

Pour le cas d'un chargement à force imposée (II-17) :

$$\begin{aligned} dU &= -F du = -F^2 dC \\ dE_{el} &= d\left(\frac{1}{2} C F^2\right) = \frac{1}{2} F^2 dC \end{aligned} \quad (II-17)$$

Dans ce cas, G vaut (II-18) :

$$G = -\frac{dU + dE_{el}}{dA} = F^2 \frac{dC}{dA} - \frac{1}{2} F^2 \frac{dC}{dA} = \frac{1}{2} F^2 \frac{dC}{dA} \quad (II-18)$$

D'où l'expression de G suivante, utile par sa dépendance à la souplesse C du système, et valable à déplacement imposé comme à force imposée (II-19) :

$$G = \frac{1}{2} F^2 \frac{dC}{dA} \quad (II-19)$$

II-1.3.3. Lien entre les critères

Il existe une relation entre le taux de libération d'énergie et le facteur d'intensité de contraintes [32], avec E' le module modifié ; $E' = E$ en contrainte plane et $E' = E / (1 - \nu^2)$ en déformation plane (II-20) :

$$G E' = K_I^2 \quad (II-20)$$

II-1.3.4. Définition de la taille critique de défaut

Dans le cas simple d'une plaque infinie avec une fissure de longueur $2a$, soumise à une contrainte de traction σ^∞ (Figure II-2 où le défaut est remplacé par une fissure) et constituée d'un matériau au module de Young E , la relation (II-21) est obtenue par combinaison des équations (II-7) et (II-20) :

$$K_I = \sqrt{G E} = \sigma^\infty \sqrt{\pi a} \quad (II-21)$$

Ainsi, pour des valeurs fixées de G_c et σ^∞ , il est possible de définir une longueur de défaut critique a_c pour laquelle la rupture intervient (II-22) :

$$a_c = \frac{E G_c}{\pi (\sigma^\infty)^2} = \frac{1}{\pi} \left(\frac{K_{IC}}{\sigma^\infty} \right)^2 \quad (II-22)$$

II-1.4. Stabilité de la fissure [19]

Un critère de propagation de la fissure a auparavant été donné ; si G atteint la valeur critique G_c , ou de façon équivalente si K atteint K_c , la fissure s'étend. Il faut cependant ajouter à cela une notion de stabilité de la propagation de la fissure. En effet, elle peut se propager puis arrêter sa course, c'est une propagation stable. Elle peut aussi être en régime instable, c'est-à-dire qu'une petite variation de chargement entraîne une grande variation d'aire A de la fissure. Cela mène bien souvent à la ruine de la pièce ou à la rupture de l'éprouvette. Pour les matériaux fragiles classiques, l'énergie de fissuration G_c reste constante, et les critères de stabilité s'écrivent (II-23) :

$$\begin{aligned} \frac{dG}{dA} < 0 \text{ ou } \frac{dK_I}{dA} < 0 : \text{Stabilité} \\ \frac{dG}{dA} > 0 \text{ ou } \frac{dK_I}{dA} > 0 : \text{Instabilité} \end{aligned} \quad (II-23)$$

II-1.5. Méthodes numériques de calcul de la ténacité par la méthode des éléments finis

Trois méthodes numériques sont fréquemment utilisées pour calculer la ténacité par la méthode des éléments finis *FEM* (*Finite Element Method*) [33]:

II-1.5.1. Méthode d'extrapolation du champ de contraintes

Dans cette méthode, un maillage très fin est utilisé en pointe de fissure afin de réussir à calculer correctement les contraintes qui s'y appliquent [34]. Les contraintes σ peuvent être calculées numériquement en fonction de l'éloignement avec la fissure r . La théorie donne une évolution de la contrainte en $1/\sqrt{r}$ (II-6), et donc en utilisant une régression adéquate, il est possible de calculer le facteur d'intensité de contraintes K_I lié à la pente de la courbe $\sigma = f(1/\sqrt{r})$. Cette méthode a besoin d'éléments très fins autour de la singularité, de manière à calculer au mieux les forts gradients de contraintes.

II-1.5.2. Méthode énergétique

Cette technique utilise directement la relation entre G et dC/dA (II-19). Elle a besoin de deux maillages : un qui représente le système avec une fissure d'aire A , et un deuxième avec une fissure d'aire $(A + dA)$. La même force F est appliquée à chacun des maillages, et le terme dC/dA peut être calculé. Cette méthode est assez simple d'emploi mais ne pas être utilisée dans le cas de modes d'ouverture mixtes, car K_I , K_{II} et/ou K_{III} ne peuvent pas être différenciés du G calculé. A noter aussi que cette méthode fait obligatoirement l'hypothèse d'une fissure parfaite, c'est-à-dire infiniment fine.

II-1.5.3. Méthode de l'intégrale J

Dans le cadre d'un comportement élastoplastique, il a été démontré que l'énergie élastique restituée lors de l'extension d'une fissure virtuelle peut être calculée. La variation d'énergie peut s'apparenter à la valeur d'une intégrale de contour (II-24) [33] :

$$J = -\frac{dP}{dA} = \int_{\Gamma} (W dy - T \frac{\partial u}{\partial x} ds) \quad (II-24)$$

dP est la variation d'énergie potentielle liée à l'extension de la fissure de variation d'aire dA . En élasticité linéaire on a donc $G = J$. Pour l'intégrale, W est la densité élastique et T est le vecteur contrainte en un point du contour Γ et u le vecteur déplacement du même point. Γ est orienté tel que représenté (Figure II-5).

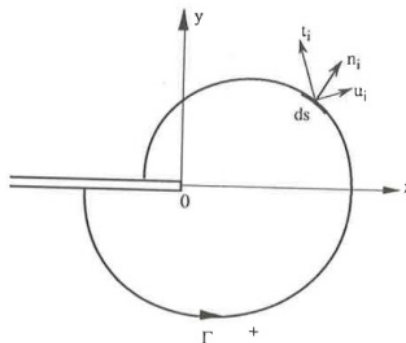


Figure II-5 : Schéma d'une intégrale de contour J autour d'une pointe de fissure [33].

Cette méthode est la plus utilisée dès lors que le matériau testé présente de la plasticité [35], mais elle peut aussi servir pour un matériau fragile, puisque $G = J$ dans ce cas particulier.

II-2. Méthodes expérimentales courantes de mesure des propriétés en rupture des céramiques

Généralement, pour un matériau fragile, la résistance à la rupture est définie en traction, puisque c'est le mode le plus limitant pour ce type de matériau, la compression ayant tendance à refermer les défauts et les fissures. Ainsi, elle peut être déterminée par des essais de traction, par des essais de flexion, mais aussi par un essai moins conventionnel : l'indentation. A noter que la mesure des propriétés à rupture dépend de la distribution en taille et en nombre des défauts dans la matière, et donc du volume sollicité dans l'échantillon.

II-2.1. Mesure de contrainte à rupture [36]

II-2.1.1. Essai de traction

L'essai de traction consiste à réaliser une sollicitation à l'aide d'une machine de traction, lors de laquelle la force et le déplacement sont enregistrés. La sollicitation est uni-axiale et homogène dans l'éprouvette, ce qui en fait la méthode la plus rigoureuse pour mesurer la résistance à la traction d'un matériau. Dans ce cas-là, le volume équivalent V_E de l'éprouvette utilisé dans le modèle de Weibull est égal au volume de l'éprouvette : $V_E = V$.

Pour ce type d'essai normalisé sur des céramiques monolithiques à comportement fragile [37], la courbe force-déplacement obtenue est linéaire jusqu'à la rupture. Connaissant la géométrie de l'éprouvette, la pente de cette courbe permet de retrouver le module de Young E du matériau. Au moment de la rupture, le rapport de la force à rupture sur la section de l'éprouvette permet de calculer la contrainte à rupture.

II-2.1.2. Essai de flexion

Les essais de traction sur céramiques étant parfois complexes et délicats à mettre en place, les essais de flexion sont plus communément utilisés, et également normalisés [38]. La sollicitation n'est pas parfaitement uniaxiale, mais engendre des contraintes de traction sur l'une des faces de l'éprouvette. Celle-ci est non-entaillée, à section carrée ou rectangulaire, de dimensions d'en général 40 mm, 20 mm, 3 mm et 4 mm pour L_1 , L_2 , W et B respectivement, B étant l'épaisseur de l'éprouvette. L'éprouvette est sollicitée par flexion trois ou quatre points, en sachant que cette dernière est préférée car elle induit un moment de flexion constant entre les deux points d'appuis internes (Figure II-6).

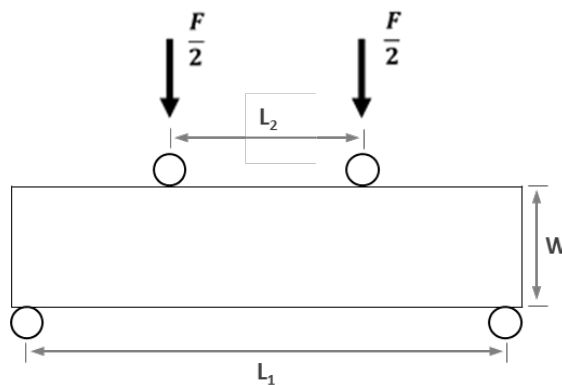


Figure II-6 : Schéma d'un essai de flexion quatre points pour la détermination de la contrainte à rupture.

Dans ce type d'essai, la contrainte à rupture σ_R peut être calculée à partir des dimensions et de la force à rupture F_R de l'éprouvette.

Dans le cas de la flexion quatre points, la contrainte σ est donnée par (II-25) :

$$\sigma = F \frac{3(L_1 - L_2)}{2 B W^2} \quad (II-25)$$

Pour la flexion trois points, la formule devient (II-26) :

$$\sigma = F \frac{3 L_1}{2 B W^2} \quad (II-26)$$

Pour ces éprouvettes de flexion, le volume équivalent V_E utilisé pour l'analyse de Weibull (équation (II-3)) n'est pas similaire à celui d'une éprouvette de traction, et est aussi différent entre la flexion trois points et la flexion quatre points (II-27)[26] :

$$V_E^{4\text{ points}} = \frac{V}{2} \left(\frac{m+1-2nm}{(m+1)^2} \right) \text{ et } V_E^{3\text{ points}} = \frac{V}{2(m+1)^2} \quad (\text{II-27})$$

V étant le volume de l'éprouvette, m le module de Weibull du matériau testé, et n est défini pour l'essai de flexion quatre points comme $n = L_1/L_2/2$.

II-2.2. Mesure de ténacité

La mesure de la ténacité découle de la mécanique de la rupture qui prend en compte la morphologie des défauts présents. Pour la mesurer correctement, il faut donc générer un défaut de géométrie contrôlée dans l'éprouvette, comme par exemple une entaille, ou idéalement une fissure.

La procédure de mesure de la ténacité d'un matériau se décompose, en général, en trois étapes :

- Fabrication d'une entaille ou génération d'une fissure dans l'éprouvette.
- Sollicitation mécanique de l'éprouvette et mesure de la force à rupture.
- Calcul de la ténacité par (II-7). Il est nécessaire de calculer la contrainte σ_R à partir de la force à rupture F_R , mais aussi de mesurer la profondeur de la fissure ou de l'entaille générée (et éventuellement le rayon de fond d'entaille ρ).

II-2.2.1. Essai sur éprouvette CT

Pour la mesure de ténacité, l'essai de traction normé pour les métaux [39] utilise une éprouvette dite CT (Figure II-7) pour Compact de Traction, rarement employée dans le cas des céramiques, car difficile à usiner.

Dans ce cas d'une entaille simple, l'expression du facteur d'intensité de contraintes est la suivante (II-28) :

$$K_I = \frac{F}{B W^{0,5}} \left(2 + \frac{a}{W} \right) \alpha \left(\frac{a}{W} \right) \quad (\text{II-28})$$

Avec la fonction α qui est donnée par (II-29) :

$$\alpha = \frac{0,866 - 4,64 \left(\frac{a}{W} \right) - 13,32 \left(\frac{a}{W} \right)^2 + 14,72 \left(\frac{a}{W} \right)^3 - 5,6 \left(\frac{a}{W} \right)^4}{\left(1 - \left(\frac{a}{W} \right) \right)^{1,5}} \quad (\text{II-29})$$

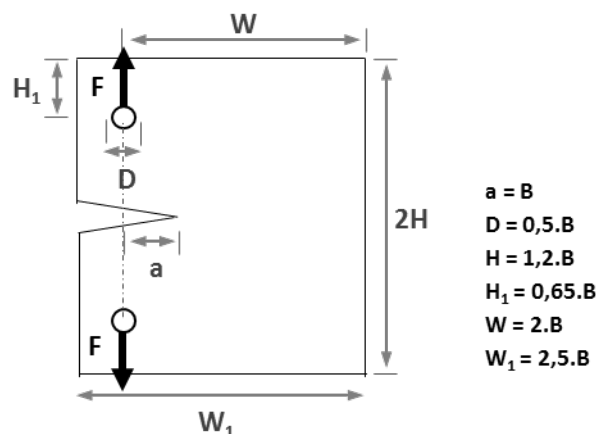


Figure II-7 : Schéma d'un essai sur éprouvette compacte de traction avec entaille simple pour déterminer la ténacité [33].

II-2.2.2. Essai de flexion sur éprouvette entaillée [36]

Les éprouvettes les plus communes sont des éprouvettes parallélépipédiques de flexion : elles sont plus pratiques à utiliser, et surtout plus faciles à usiner, et ce particulièrement dans les matériaux fragiles. Cependant,

contrairement à un essai de traction, le mode de sollicitation n'est pas parfaitement uniaxial ; une seule face de l'éprouvette est en traction et l'autre est en compression.

▪ Entaille simple

Pour faire des mesures de ténacité précises sur des céramiques, il faut idéalement initier la rupture depuis une vraie fissure. Les normes prévoient donc l'utilisation d'éprouvettes pré-fissurées sur une seule face *SEPB* (*Single Edge Precracked Beam*) [40], pré-fissurées en surface *SCF* (*Surface Cracked in Flexure method*) [41], ou bien avec une entaille chevron *CNB* (*Chevron Notched Beam*) qui favorise la création et la propagation contrôlée d'une fissure [42].

Il est par contre souvent difficile de générer une pré-fissure mais aussi de contrôler parfaitement sa morphologie dans un matériau fragile. Une méthode plus simple, fiable et très utilisée [43] consiste à fabriquer une entaille à l'aide d'une scie, puis d'affiner le fond d'entaille ρ , avec une lame de rasoir par exemple, afin de réduire au maximum son rayon ρ (Figure II-8). Ce type d'éprouvette normalisé uniquement pour les métaux [39] est appelé *SENB* (*Single Edge Notched Beam*) (Figure II-8).

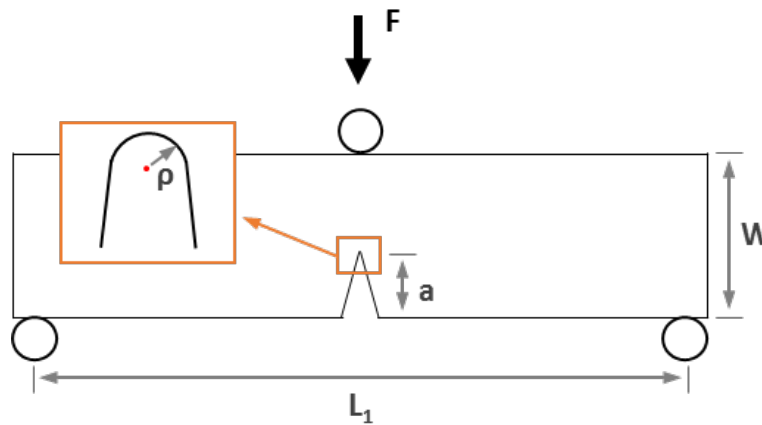


Figure II-8 : Schéma d'un essai de flexion trois points sur éprouvette entaillée pour la détermination de la ténacité. Idéalement l'entaille peut être assimilée à une fissure parfaite, sans largeur. En pratique le rayon de fond d'entaille ρ est non nul.

Dans le cas d'une entaille simple, avec B l'épaisseur de l'éprouvette et σ la contrainte dans une éprouvette de flexion trois points (II-26), l'expression du facteur d'intensité de contraintes est (II-30) [33] :

$$K_I = \sigma \sqrt{\pi a} \alpha \left(\frac{a}{W} \right) \quad (II-30)$$

Avec la fonction α (II-31):

$$\alpha = 1,122 - 1,4 \left(\frac{a}{W} \right) + 7,33 \left(\frac{a}{W} \right)^2 - 13,08 \left(\frac{a}{W} \right)^3 + 14,0 \left(\frac{a}{W} \right)^4 \quad (II-31)$$

Dans le cas d'une entaille simple, celle-ci peut être approximée par une fissure de profondeur a et de largeur égale à celle de l'éprouvette B , et donc sa variation d'aire dA a pour expression (II-32) :

$$dA = B da \quad (II-32)$$

Le taux de restitution d'énergie G de l'éprouvette peut s'exprimer en fonction de sa souplesse C et de la profondeur de la fissure a (partie II-1.3.2). En pratique, il est rare d'observer une propagation stable dans les céramiques, mais cette approche est utile pour calculer numériquement la ténacité de l'éprouvette (partie II-1.5.2). Par l'équation reliant la souplesse de l'éprouvette avec G (II-19) et par le lien entre G et K (II-20), il est possible de définir la ténacité K_{Ic} , c'est-à-dire le facteur d'intensité de contraintes au moment de la rupture de l'éprouvette, par l'expression (II-33) :

$$K_{Ic} = \sqrt{\frac{1}{2} \frac{F_R^2}{B} \left(\frac{\partial C}{\partial a} \right)_{a_c}} E' \quad (II-33)$$

Avec	F_R :	Force appliquée au moment de la rupture (en N)
	C :	Souplesse de l'éprouvette (en m.N ⁻¹)
	a :	Profondeur de la fissure (en m)
	a_c :	Profondeur de la fissure au moment de la rupture (en m)
	E' :	Module de Young modifié du matériau (en Pa)

▪ Entaille chevron

Il est souvent compliqué de générer une fissure dans une éprouvette, et pourtant c'est la technique la plus précise pour faire une mesure de ténacité, car une entaille engendre une approximation puisqu'elle a une largeur finie. Une autre solution est de fabriquer une entaille dont la forme favorise une propagation stable d'une fissure dans l'éprouvette ; c'est le but d'une entaille chevron [42].

Contrairement à une entaille simple, il y a une concentration des contraintes très importante au sommet du chevron (Figure II-9). Une fissure se forme alors, et se propage de façon stable, parce que sa largeur, et donc sa surface, augmente avec la profondeur de propagation. Sa profondeur à un instant quelconque, notée a , et sa largeur, notée b , sont liées par la relation (II-34) :

$$b = B \frac{a - a_0}{a_1 - a_0} \quad (II-34)$$

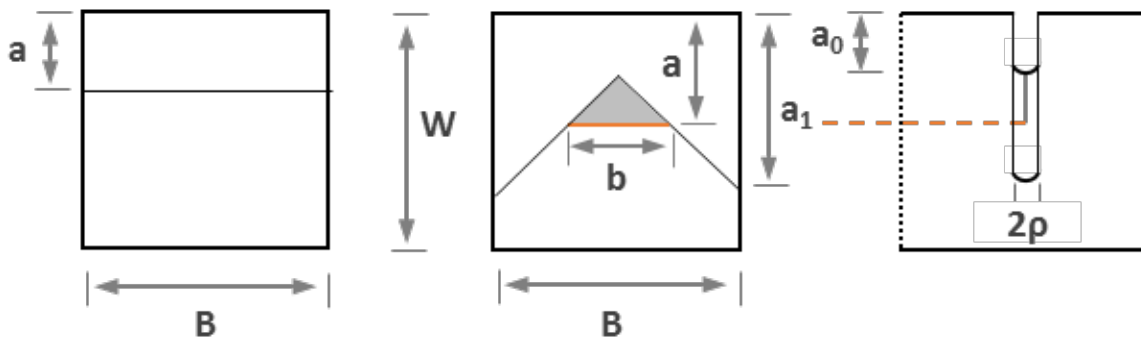


Figure II-9 : Schéma d'une entaille : (à gauche) simple vue en coupe ; (au milieu) chevron vue en coupe ; (à droite) chevron vue de côté.

Une éprouvette avec une entaille chevron présente en général une courbe force-déplacement typique d'une propagation stable (Figure II-10 - a). Dans le cas où l'entaille serait idéale, c'est-à-dire avec un rayon de fond ρ d'entaille nul, la fissure propagerait immédiatement au début du chargement de l'éprouvette. Comme en pratique ρ est non nul (Figure II-9), la force qui permet d'initier cette propagation est également finie et est notée F_i . Une fois cette force atteinte, une fissure se propage de façon stable dans le chevron. Une force maximum F_{max} est ensuite atteinte pour laquelle l'éprouvette rompt et c'est à partir de F_{max} que la ténacité est déterminée.

Parfois, après avoir atteint une force F_i , une légère décroissance de la force est observée (Figure II-10 - b), puis il y a propagation et passage par un maximum F_{max} , qui permet tout de même de réaliser une mesure. Cependant dans un dernier cas (Figure II-10 - c), après avoir atteint la force d'initiation, le critère d'arrêt n'est pas atteint, et l'éprouvette est rompue sans propagation stable de fissure, ce qui empêche de réaliser toute mesure de ténacité.

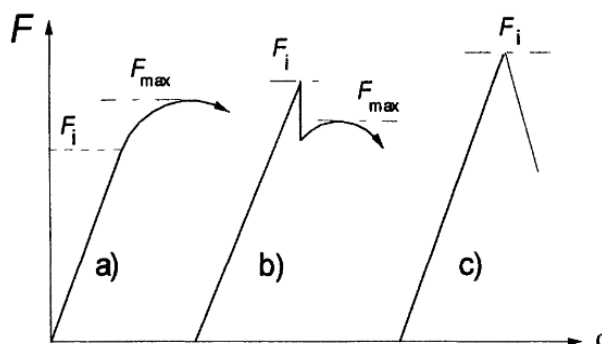


Figure II-10 : Courbes force-déplacement typiques d'une éprouvette avec entaille chevron [36].

La ténacité est mesurée à partir de la force F_{max} pour une profondeur de fissure critique a_c . Si l'équation (II-33) est reprise en calculant la profondeur de fissure par (II-34), le facteur d'intensité de contraintes est donc (II-35) :

$$K_I = \sqrt{\frac{1}{2} F^2 \frac{dC}{da} E' \frac{(a_1 - a_0)}{B (a - a_0)}} \quad (II-35)$$

Soit la fonction $F_v(a)$ (II-36) :

$$F_v(a) = \sqrt{\frac{1}{2} \frac{(a_1 - a_0)}{B \cdot (a - a_0)} E' \frac{dC}{da}} \quad (II-36)$$

$F_v(a)$ dépend de la profondeur de fissure via deux termes :

- La dérivée de la souplesse C par rapport à a , C étant croissante avec a . Sur des éprouvettes macroscopiques, dC/da peut être mesuré expérimentalement.
- Le terme $\frac{(a_1 - a_0)}{(a - a_0)}$ qui est décroissant avec a .

Ainsi cette fonction, et par conséquent K_I , présentent un minimum pour une profondeur particulière, dite critique, et notée a_c . Si le critère d'arrêt abordé précédemment est utilisé (*partie II-1.4*), le passage d'une fonction décroissante à une fonction croissante pour K_I reflète le passage d'un état stable à instable pour la propagation de fissure. Alors, l'expression de la ténacité pour une éprouvette à géométrie quelconque (au moment de la rupture, donc pour F_{max} et a_c) devient (II-37):

$$K_{Ic} = F_{max} F_v(a_c) \quad (II-37)$$

II-2.3. Indentation

II-2.3.1. Généralités

Les méthodes d'indentation sont couramment utilisées pour déterminer la ténacité des matériaux fragiles. Elles consistent à appliquer une force à l'aide d'une pointe, directement sur la surface polie du matériau. Selon la force appliquée, l'empreinte et par conséquent le volume de matière sondé, sont plus ou moins grands. Pour des profondeurs d'indentation inférieures à 1 μm , le terme nano-indentation est généralement utilisé. Dans ce cas, l'essai est instrumenté : une courbe force-déplacement est enregistrée. Pour la micro- et macro-indentation, où les forces sont généralement supérieures au Newton, l'essai n'est généralement pas instrumenté. L'indentation permet une mesure beaucoup plus locale que les méthodes précédemment exposées.

Ce type d'essai a initialement été amené par les travaux de Hertz sur la mécanique des contacts [44], qui décrivent le contact élastique entre deux solides, et dont découle l'indentation Hertzienne, avec une pointe sphérique. Ensuite, les pointes pyramidales sont devenues largement les plus utilisées [45], la technique étant économique, facile d'emploi et versatile [46]. La pointe génère une déformation élastique, mais aussi plastique, en forme de quasi-demi-sphère sous l'empreinte [47]. L'incompatibilité des déformations entraîne l'amorçage de fissures, puis à la décharge, leur propagation, depuis la partie inférieure de l'empreinte jusqu'à la surface. L'étude de ce type de fissure a été amorcée par Palmqvist en 1957 [48], mais le concept de mesure de la trace laissée en surface par les fissures pour remonter à la ténacité du matériau a été proposé par Evans et Charles en 1976 [49]. Cette technique apparaît alors comme une méthode très attractive pour la mesure de ténacité, illustrée par de très nombreux travaux de recherche sur le sujet. Elle est souvent dénommée *IF* (ou *VIF*), pour (Vickers) *Indentation Fracture toughness test*.

En 2007, Quinn et Bradt [15] ont fortement critiqué cette méthode de mesure de la ténacité. Ils mettent en avant le nombre important d'équations disponibles dans la littérature, qui seraient plus ou moins calibrées sur les jeux de données de chaque auteur, mentionnant que cela présage notamment d'un manque de base théorique. La grandeur mesurée s'apparente donc plus à un critère d'arrêt de la fissure qu'à un critère de propagation. Ils concluent que « la technique d'indentation n'est pas adaptée à la mesure de K_{Ic} ou de tout autre forme de paramètres de résistance à la rupture des céramiques ».

Cependant, de nombreux auteurs ont répondu à cette critique, en publiant une analyse de la méthode d'indentation [46]. Ils ne remettent pas en cause tous les arguments précédents, notamment sur le fait que les équations d'indentation sont calibrées avec d'autres types de mesures. Ils expliquent cependant que cette méthode est fondée sur le critère de Griffith (*partie II-1.3*), et que même si elle est sujette à des incertitudes estimées pouvant aller jusqu'à 40%, elle reste une méthode rapide, efficace, et facile à mettre en œuvre pour faire des essais exploratoires dans le domaine de la mécanique de la rupture. Ainsi, elle est particulièrement adaptée pour des mesures comparatives, mais aussi pour tester des petits éléments inaccessibles par d'autres techniques : phases d'un matériau, revêtements, surfaces saines dans un matériau fissuré etc...

II-2.3.2. Description

Il existe différentes géométries de pointes effilées, toutes pyramidales, dont trois sont communément utilisées : les pointes Vickers (*Figure II-11 - a*), Berkovich (*Figure II-11 - b*) et Cube Corner (*Figure II-11 - c*).

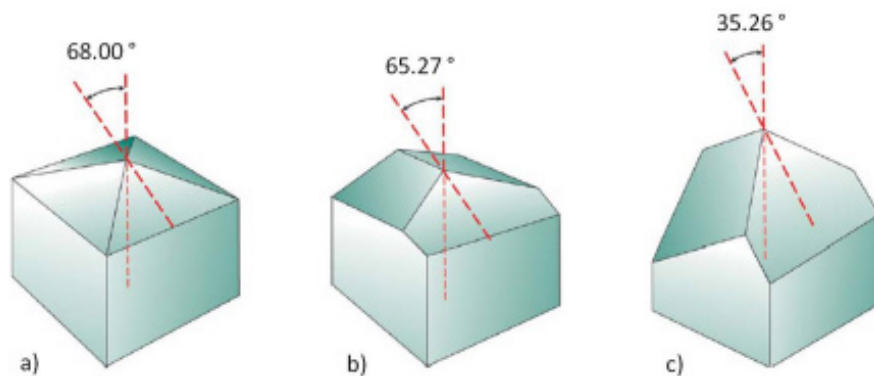


Figure II-11 : Différentes géométries de pointes pyramidales pour indentation. (a) Pointe Vickers ; (b) Pointe Berkovich ; (c) Pointe Cube Corner [50].

En mesurant les dimensions de l'empreinte et les longueurs de fissures qui se développent autour de celle-ci, mais aussi des grandeurs telles que la dureté H et le module de Young E du matériau, sa ténacité K_{IC} peut être déterminée. Dans le cas d'essais de micro-dureté (sans mesure de courbe force-déplacement), la dureté H_v est communément mesurée en divisant la force appliquée par l'aire de contact de la pointe avec la surface. En indentation instrumentée, H est calculée en faisant le rapport de la charge appliquée par l'aire de contact projetée, c'est-à-dire l'aire de l'empreinte laissée sur le matériau. Dans ce document, la dureté H utilisée résulte toujours de l'utilisation de l'aire projetée.

Il faut noter cependant que la formule utilisée pour calculer le K_{IC} varie considérablement selon le système de fissure généré, mais aussi selon la géométrie de la pointe. Trois types de fissure peuvent généralement être observés lors d'un essai d'indentation (*Figure II-12*) : les médianes (M), les radiales (P) et les latérales (L) [51].

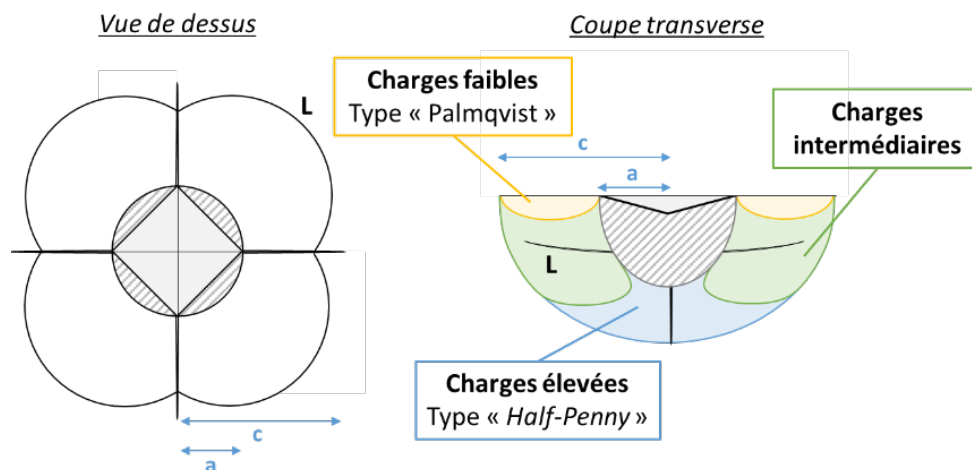


Figure II-12 : Morphologie des fissures générées lors d'un essai d'indentation Vickers, vue de dessus et en coupe transverse. La zone hachurée correspond à la zone plastifiée sous l'empreinte [52]. Les fissures notées « L » sont de type latéral.

Il existe principalement deux configurations de fissuration : radiale (ou « Palmqvist ») et médiane (ou « *Half-Penny* ») (*Figure II-12*) :

- « **Médiane** » : Lors de la sollicitation du matériau, l'endommagement se forme sous la zone plastique, une fissure se crée alors sous la pointe. A la décharge, la zone sous la surface est mise en tension, les fissures se développent beaucoup et il en résulte un système en demi-disque sous et autour de l'empreinte, souvent appelé « *Half-Penny* ». Cette configuration s'observe généralement pour des charges élevées d'indentation, ou quand le matériau est peu tenace.
- « **Radiale** » : Cette fois l'endommagement se forme dans les coins de la pointe, et à la décharge des fissures latérales croissent en surface, c'est la configuration « Radiale », aussi appelée « Palmqvist ». Cette configuration s'observe plutôt pour des charges faibles d'indentation, ou quand le matériau est plus tenace.

Ce sont les deux configurations théoriques et couramment admises, cependant il existe des états intermédiaires entre les deux. Il existe aussi des fissures latérales qui ne se forment pas le long des axes de la pointe (*Figure II-12*). Dans tous les cas, les fissures se forment lors de la charge, puis se propagent à cause des contraintes de traction générées à la jonction de la zone élastique et de la zone plastifiée : à la décharge, la partie élastique ne peut reprendre sa position initiale à cause de la déformation irréversible de la zone plastifiée. La dureté H est une grandeur qui estime l'ampleur de la zone plastique, le module de Young E définit l'élasticité du matériau, et donc le rapport E/H est caractéristique des contraintes résultantes de l'essai d'indentation.

Dans le cas d'un matériau opaque, il n'est pas possible de distinguer les différentes configurations, et des critères sont souvent utilisés pour déterminer quelle équation doit être utilisée. Généralement, le critère le plus employé est basé sur la mesure en surface de la longueur des fissures l et de la diagonale de l'empreinte a . C'est le rapport c/a qui sera alors déterminant, c étant le paramètre de fissuration qui somme a et l (*Figure II-12*).

Selon la charge appliquée, la microstructure du matériau ou bien le type de pointe utilisé, les fissures générées sortent plus ou moins de la configuration théorique donnée dans la *Figure II-12*. Pour que les mesures soient acceptables, des conditions sont appliquées sur les formes des empreintes et des fissures visibles en surface ; si elles ne sont pas remplies pour un essai, il est écarté. Ces conditions peuvent se résumer en quelques points [53] :

- Les empreintes sont symétriques.
- Les empreintes ne sont pas réalisées sur une ou plusieurs porosités de dimensions avoisinants celles de l'empreinte.
- Les empreintes n'engendrent pas de déchaussement de joints de grains.
- Une fissure par axe de la pointe est générée. Ces fissures restent à peu près droites et dans les axes de l'empreinte.
- Il n'y a pas d'écaillage visible en surface, c'est-à-dire que les fissures latérales n'aboutissent pas à la surface (*Figure II-12*).

II-2.3.3. Pointe Vickers

Dans le cas d'une pointe Vickers, il existe de nombreuses équations disponibles pour calculer la ténacité du matériau [54][55] à partir des dimensions de l'empreinte et des fissures (*Figure II-13*). La plupart sont issues de l'analyse de Lawn *et al.* [56] des fissures générées à l'interface d'une zone plastique et d'une zone élastique dans un solide, en supposant des formes de demi-disques, c'est-à-dire en configuration « *Half-Penny* ». Certaines des équations les plus rencontrées dans la littérature sont listées ci-dessous.

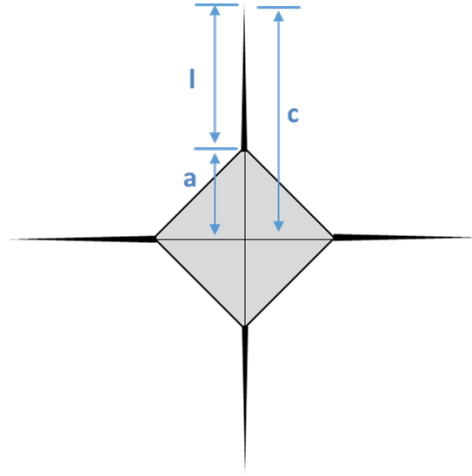


Figure II-13 : Schéma d'une empreinte Vickers (vue de dessus) et des fissures visibles en surface pouvant se former autour. En pratique, pour mesurer a , c et l , une moyenne des mesures des quatre grandeurs, une pour chaque axe, est réalisée.

L'équation la plus utilisée, car issue d'une calibration robuste sur de nombreux matériaux fragiles, a été proposée par Anstis [57] et est uniquement valable dans la configuration « *Half-Penny* », pour $c/a > 2$ (II-38). La dureté H est calculée avec l'aire de contact projetée et le module E utilisé est mesuré macroscopiquement. L'équation a été déterminée sur des gammes de force comprises entre 1 N et 1000 N, selon le matériau testé.

$$K_{IC} = 0,016 \left(\frac{E}{H} \right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{F}{c^{3/2}} \right) \quad (II-38)$$

Laugier et al. [58] adaptèrent l'équation d'Anstis pour la configuration de fissure de type « Palmqvist » (II-39) :

$$K_{IC} = 0,015 \left(\frac{l}{a} \right)^{-0.5} \left(\frac{E}{H} \right)^{\frac{2}{3}} \left(\frac{F}{c^{3/2}} \right) \quad (II-39)$$

Niihara et al. [59] proposèrent deux équations, une pour chaque configuration. Dans la configuration « *Half-Penny* » que Fett et Munz [36], par des considérations théoriques [60][61], estiment valable pour $c/a > 2,5$, l'équation est (II-40) :

$$K_{IC} = 0,033 \left(\frac{E}{H} \right)^{0.4} \left(\frac{F}{c^{3/2}} \right) \quad (II-40)$$

Dans la configuration « Palmqvist », que Niihara et al. [59] observent pour des ratios c/a inférieurs à 3,5, l'équation proposée est (II-41) :

$$K_{IC} = 0,009 \left(\frac{E}{H} \right)^{0.4} \left(\frac{F}{a \cdot \sqrt{l}} \right) \quad (II-41)$$

Le fait que le critère pour déterminer la configuration ne soit pas clairement identifié quand le rapport c/a s'approche de 3 n'est finalement pas très important, puisque les deux formules sont alors presque équivalentes.

II-2.3.4. Pointe Berkovich

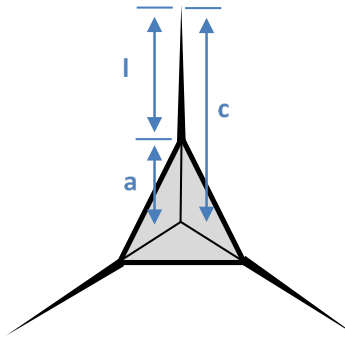


Figure II-14 : Schéma d'une empreinte Berkovich (vue de dessus) et des fissures pouvant se former autour. En pratique, pour mesurer a , c et l , une moyenne des mesures des trois grandeurs, une pour chaque axe, est réalisée.

Pour une empreinte Berkovich, la pyramide est à base triangulaire et sa géométrie a été développée pour avoir la même aire projetée que la pointe Vickers. Les équations pour calculer la ténacité à partir des dimensions de l'empreinte et des fissures (Figure II-14) sont modifiées. Contrairement à une pointe Vickers, la pointe Berkovich présente une symétrie qui ne permet pas aux fissures générées dans les coins de se rejoindre sous l'empreinte pour former un demi-disque. En général, peu importe le ratio c/a , le mode de fissuration supposé est le mode « Palmqvist » [62]. Cela a d'ailleurs été confirmé par de la tomographie du système de fissuration, réalisée sous des empreintes d'indentation Berkovich [63]. Ainsi le formalisme de Laugier est le plus souvent utilisé, car développé pour des fissures de type « Palmqvist » (II-42) :

$$K_{IC} = \phi \left(\frac{a}{l} \right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{E}{H} \right)^{\frac{2}{3}} \left(\frac{F}{c^{\frac{3}{2}}} \right) \quad (II-42)$$

Dukino *et al.* [62] proposèrent, en adaptant la formule de Laugier par des considérations géométriques, un coefficient ϕ de 0,016, alors qu'une calibration du coefficient sur différents matériaux par Cuadrado *et al.* [63] entraîne un coefficient de 0,022.

II-2.4. Paramètres pouvant influencer les mesures de ténacité

II-2.4.1. Résistance croissante à la propagation de fissure [36]

Pour un matériau parfaitement fragile, la ténacité K_{IC} est indépendante de l'avancée de la fissure Δa . Dans ce cas, la courbe du facteur d'intensité de contraintes K_I en fonction de Δa est une droite horizontale et $K_{IC} = K_{I0}$. Cependant, dans de nombreux cas la résistance à la propagation de fissure augmente avec l'extension de celle-ci (Figure II-15). La courbe K_I en fonction de Δa n'est plus décrite par une valeur unique K_{I0} , mais par une courbe croissante.

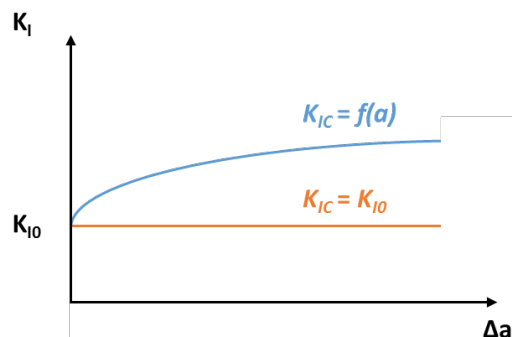


Figure II-15 : Courbes de facteur d'intensité de contraintes K_I en fonction de l'avancée de la fissure Δa . (En orange) matériau parfaitement fragile. (En bleu) matériau présentant une résistance à la propagation de fissure.

La résistance à l'avancement de la fissure peut être expliquée par plusieurs phénomènes qui peuvent être différenciés selon leur position au vis-à-vis de la fissure. En avant du front de fissure, différents éléments sont susceptibles de gêner la propagation de la fissure. Tout d'abord les contraintes en fond de fissures peuvent générer localement de la plasticité, voir des transformations de phase (cas de la zircone partiellement stabilisée).

D'autre part des éléments de la microstructure, comme par exemple des porosités, des microfissures ou des joints de grains, peuvent entraîner la déviation de la fissure. Ainsi, sa surface peut augmenter considérablement, ce qui dissipe de l'énergie. En arrière de la fissure, des effets de pontage peuvent être considérés. Lors de l'ouverture de la fissure, des éléments de la microstructure (grains, fibres...) peuvent générer du frottement entre les deux surfaces, ce qui dissipe de l'énergie qui sera donc soustraite à l'énergie disponible pour faire propager la fissure.

II-2.4.2. Effet de fond d'entaille

Expérimentalement [36], il a été montré que la ténacité mesurée croît avec le rayon de fond d'entaille ρ (Figure II-16). Cela s'explique par un écart avec l'hypothèse de fissure parfaite utilisée pour définir le facteur d'intensité de contraintes (partie II-1.2.3). Plus le fond d'entaille est émoussé (ρ augmente), plus la concentration des contraintes diminue, et donc plus le K_{Ic} mesuré est surestimé. Sous un certain seuil ρ_c cependant, la ténacité mesurée ne varie plus avec ρ , et donc pour réaliser les éprouvettes, il faut affiner l'entaille de façon être dans le domaine d'indépendance de la ténacité en fonction de ρ .

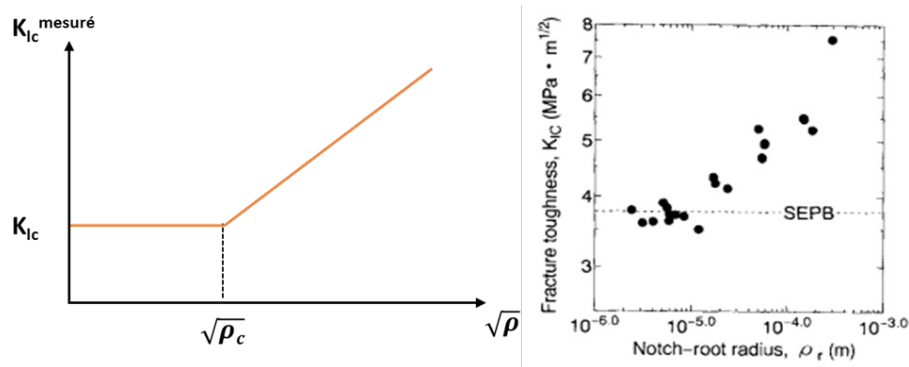


Figure II-16 : Evolution de la ténacité mesurée avec le rayon de fond d'entaille ρ : (à gauche) courbe théorique [36] ; (à droite) courbe expérimentale obtenue sur de l'alumine à microstructure fine par flexion d'éprouvettes macroscopiques pré-entaillées (SENB) et pré-fissurées (SEPB) [64].

Les méthodes d'indentation ne sont pas affectées par cet effet de fond d'entaille, puisqu'elles génèrent et propagent des fissures durant le test. Cependant, elles sont davantage sujettes aux contraintes résiduelles potentiellement présentes en surface, par exemple induites par le polissage de la surface du matériau.

II-2.4.3. Croissance lente de la fissure

La fissure peut se propager d'une autre manière, appelée propagation sous-critique et notée SCG pour « Subcritical Crack Growth » [36]. C'est une croissance lente de la fissure pour un facteur d'intensité de contraintes inférieur à la ténacité du matériau. Ce phénomène est connu pour être actif dans certaines céramiques telles que la zircone ou l'alumine. Il est particulièrement favorisé par les molécules d'eau présentes dans l'atmosphère lors de l'essai : elles s'introduisent dans la fissure et diminuent localement l'énergie de surface du matériau [65]. Dans ce cas, les molécules d'H₂O réagissent avec la céramique en fond de fissure [32], ce qui change ses propriétés locales : c'est un phénomène de corrosion sous contrainte.

La vitesse v de propagation de la fissure (en m/s) est uniquement dépendante du facteur d'intensité de contraintes. Dans les matériaux céramiques, la courbe $v = f(K_I)$ à charge constante présente quatre régions (Figure II-17 - pointillés noirs), souvent approximées par trois (Figure II-17 - courbe rouge). A faible K_I , région I, la vitesse de propagation de la fissure est nulle sous une valeur seuil (K_{Ith} , pour *threshold*). Ensuite la vitesse de propagation suit une loi puissance : dans ce stade I, le processus est contrôlé par la vitesse de réaction de l'espèce corrosive avec la céramique en fond de fissure, A et n étant dépendants du matériau et de l'environnement (présence d'eau dans l'atmosphère, température...) (II-43) :

$$v_I = A K_I^n \quad (II-43)$$

La région II est ensuite caractérisée par un palier, et donc par une indépendance de v par rapport à K_I . Physiquement, la vitesse de propagation de la fissure est contrôlée par la diffusion des espèces corrosives jusqu'en fond de fissure. Finalement dans la région III, la vitesse de propagation est grande et entraîne la ruine

rapide de l'éprouvette : la charge est suffisante pour provoquer une rupture dans les mêmes conditions que dans le vide. En pratique v_{III} suit également une loi puissance, mais est souvent approximé par une droite verticale pour une valeur de K_I égale à la ténacité du matériau K_{Ic} [36].

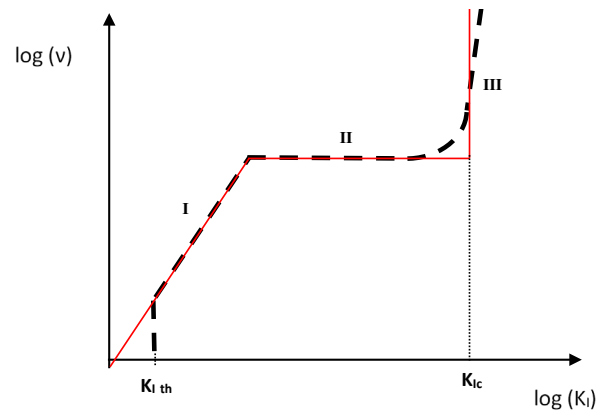


Figure II-17 : Courbes du logarithme de la vitesse de propagation de la fissure v en fonction du logarithme du facteur d'intensité de contraintes K_I . (En pointillées) la courbe observée expérimentalement, (en rouge) les courbes d'approximation.

II-3. Méthodes expérimentales transposées à l'échelle microscopique pour mesurer les propriétés à la rupture des matériaux

Même si l'indentation est une méthode qui se transpose facilement à l'échelle microscopique en réduisant la charge appliquée, elle est éloignée des essais normalisés de mesures de propriétés à la rupture. Cependant, grâce aux avancées récentes dans la fabrication de micro-, voire nano-, objets, il est désormais envisageable de réaliser des éprouvettes s'approchant des géométries standards, mais avec des dimensions micrométriques.

II-3.1. Différentes géométries d'éprouvettes

De nombreuses géométries de test micromécanique peuvent être imaginées et utilisées. Les essais peuvent se faire à l'échelle submicronique, par exemple par traction ou compression d'éprouvettes dans un Microscope Electronique à Transmission (MET) [66]. Ils peuvent également être à l'échelle de quelques microns, par exemple avec un essai de flexion trois point [67] ou de traction [68] dans un Microscope Electronique à Balayage (MEB). En fait, la manière de solliciter et de fabriquer les éprouvettes peut varier considérablement. Dans cette étude, le matériau d'intérêt entraîne des contraintes importantes pour les essais : le matériel doit être « nucléarisé ». De par la disponibilité réduite et la durée de nucléarisation de tels équipements, le travail de cette thèse est réalisé avec de l'équipement déjà installé en laboratoire de haute activité, à savoir une sonde ionique focalisée *FIB* utilisant des ions gallium pour la fabrication des éprouvettes, et un nano-indenteur pour la sollicitation mécanique.

Jaya et *al.* [69] ont étudié et présenté différentes géométries de micro-éprouvettes fabriquées au *FIB* et sollicitées par un nano-indenteur pour la mesure de ténacité. Quatre options sont proposées et appliquées à du silicium monocristallin (*Figure II-18*) :

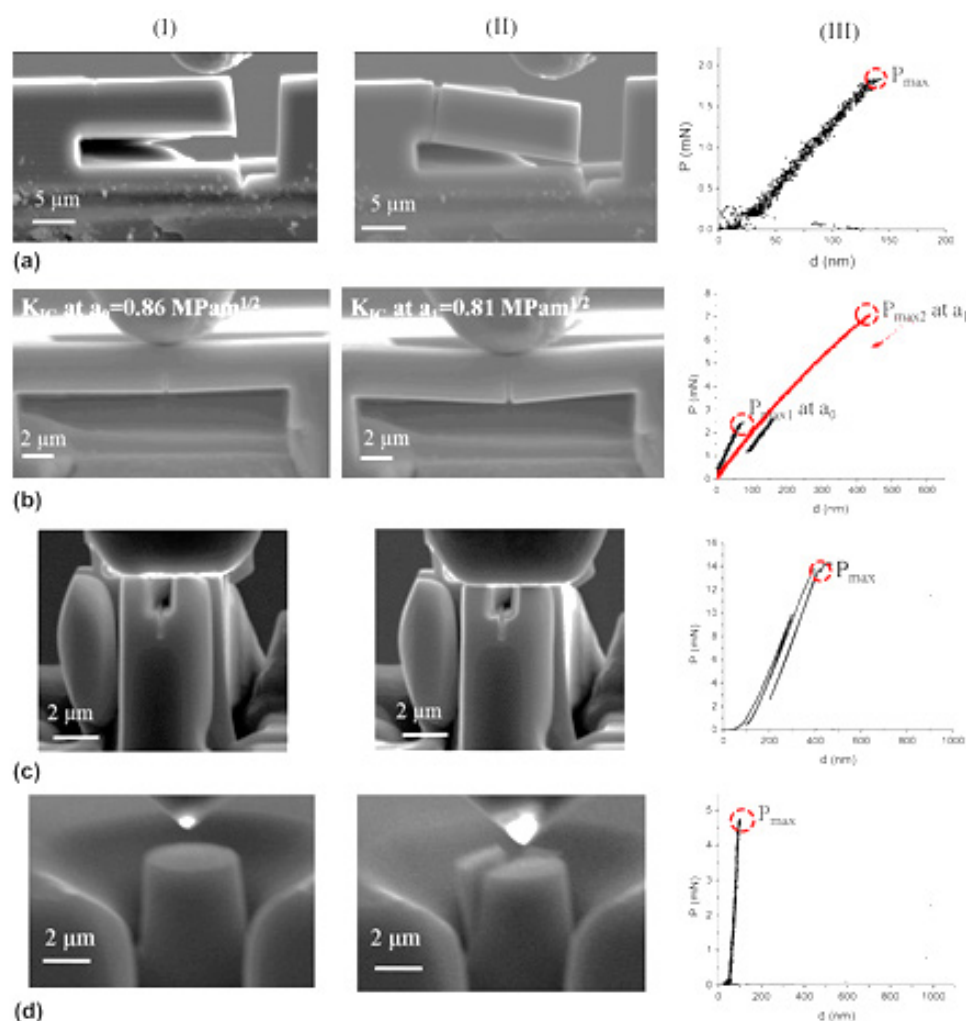


Figure II-18 : Images MEB [69] : (I) des éprouvettes ; (II) de leur sollicitation *in-situ* ; (III) de la courbe force-déplacement associée. (a) Poutre simple pré-entaillée et encastrée. (b) Poutre pré-entaillée et encastrée des deux côtés. (c) Pilier pré-entaillé. (d) Pilier indenté.

- Une poutre encastrée pré-entailée et sollicitée en flexion (*Figure II-18 - a*). C'est le type d'éprouvette le plus classique. La ténacité est calculée par l'équation (II-7) en mesurant les dimensions de la poutre, de l'entaille et sa force à rupture.
- Une poutre encastrée des deux côtés et pré-entailée (*Figure II-18 - b*). La sollicitation se fait au centre de la poutre, au-dessus de l'entaille, ce qui engendre une propagation stable de la fissure avant rupture. La ténacité est mesurée de la même manière que le cas précédent [70].
- Un pilier, dont la surface supérieure est divisée en deux plots (*Figure II-18 - c*). Une pointe cylindrique à embout plat permet d'appuyer sur ces deux plots en même temps, ce qui a pour conséquence de les écarter et donc de propager une fissure [71]. L'un des inconvénients de cette méthode est qu'il faut déterminer le coefficient de frottement μ entre la pointe et le matériau testé.
- Un pilier sans pré-entaille, sollicité avec une pointe Berkovich (*Figure II-18 - d*). Cette solution, appelée « *pillar splitting* » [72][73], écarte les problèmes d'effets de rayon de fond d'entaille [74]. Par contre, elle présente les mêmes inconvénients que l'indentation, à savoir qu'une calibration avec d'autres essais est nécessaire pour calculer la ténacité.

II-3.1.1. Choix de la géométrie adaptée

Les différentes géométries de micro-éprouvettes présentées dans la littérature ne sont pas toutes adaptées aux besoins et aux contraintes de cette étude. Les méthodes « pilier pré-entailé » et « pilier indenté » seront écartées. Dans les deux cas, il faut prendre en compte le coefficient de frottements entre la pointe et la surface, difficilement accessible, particulièrement dans le cas du combustible irradié. De plus, ces méthodes présentent les mêmes désavantages que la mesure de ténacité par indentation (calibration nécessaire), et l'un des premiers objectifs de ces essais de micromécanique est de compléter les méthodes d'indentation, qui grâce à leur facilité de mise en œuvre, sont et resteront utilisées pour l'évaluation des propriétés à rupture des combustibles vierges et irradiés. La géométrie de poutre à double encastrement n'est pas réalisable dans le cas du combustible irradié, où seule la surface de l'échantillon est accessible ; les échantillons étant préparés à partir de tronçons de crayon irradié en réacteur. Ainsi le choix de la géométrie se porte sur la poutre pré-entailée et encastrée d'un côté (en porte à faux) (*Figure II-18 - a*). Elle comporte de nombreux points forts pour cette étude :

- Elle convient à des sollicitations *ex situ* et *in situ* au microscope. En effet, la mise au point de la méthode sur un matériau modèle de combustible a été prévue avec un nano-indenteur *ex situ* au MEB, alors que l'étude du combustible se fera avec un nano-indenteur *in situ* à la chambre d'un MEB/FIB nucléaire.
- Elle peut être fabriquée avec une section pentagonale, connue pour donner des résultats similaires à la section carrée [75]. Cette géométrie est la seule envisageable pour le combustible irradié, car pour usiner une section carrée au FIB, il y a plusieurs contraintes de fabrication. D'une part, l'éprouvette doit être réalisée sur un bord à angle droit de l'échantillon. D'autre part, après les premières étapes de fabrication au FIB, l'échantillon doit être tourné de 90° en le plaçant sur un porte-échantillon incliné. Or le combustible irradié est généralement préparé par tronçon avec la gaine autour (*Figure I-12*). Il faudrait donc découper les échantillons, mais aussi les manipuler plusieurs fois pour terminer la fabrication des éprouvettes, ce qui est complexe dans l'environnement nucléaire puisque ces étapes se font par télémanipulation en cellules blindées.
- La méthode associée n'a pas besoin de calibration ou de coefficient de frottements entre le matériau et la pointe.
- Elle convient aux mesures sur interfaces, par exemple des joints de grains, ce type de mesure pouvant apporter beaucoup dans l'étude des caractéristiques du combustible.
- Elle peut aussi s'adapter à des mesures de contraintes à rupture si aucune entaille n'est réalisée sur l'éprouvette. Cette grandeur est également importante, car inconnue sur le combustible irradié.
- Par contre, cette géométrie de micro-éprouvette présente également des limites, qui sont principalement liées à l'endommagement de la matière par le faisceau ionique et qui sont détaillées ultérieurement.

II-3.2. Présentation des essais de flexion sur micro-poutres usinées au FIB

II-3.2.1. Origines de l'essai

Les premiers essais de flexion de micro-éprouvettes sur un matériau fragile utilisant un nano-indenteur ont été réalisés en 1988 sur du silicium monocristallin [76] et sur des revêtements de SiO_2 [77]. Dans les deux cas, les éprouvettes étaient non-entaillées et fabriquées grâce à des procédés lithographiques de l'industrie de la micro-électronique, suivies par des traitements de dissolution sélective. Ces types de procédé ne sont pas applicables à tous les matériaux et Di Maio *et al.* en 2005 [78] ont étendu la méthode à une gamme plus large de matériaux grâce à l'utilisation du MEB/FIB pour préparer les éprouvettes. Ce procédé a également permis d'introduire une entaille et donc de faire des mesures de ténacité. Le but était de mesurer les propriétés mécaniques de revêtements très fins (quelques microns), pour lesquels il est impossible de réaliser des essais aux dimensions standards, tandis que les résultats de nano-indentation sont largement influencés par le substrat.

Motz *et al.* [79] en 2005, puis Kiener *et al.* [35] en 2006, ont également utilisé des éprouvettes non-entaillées fabriquées au FIB pour réaliser des essais mécaniques sur des monocristaux de cuivre. Il a été relevé qu'avec des tailles micrométriques d'éprouvette, les contraintes à rupture sont beaucoup plus élevées qu'à l'échelle macroscopique, mais aussi que la plasticité est exacerbée. Il y a également une première apparition de la question de l'implantation ionique des ions gallium Ga^+ utilisés dans le faisceau FIB et de ses effets sur les mesures des propriétés mécaniques. Cela montre bien que dès le début de l'utilisation du FIB pour les essais de micromécaniques, des interrogations sur l'effet du faisceau ont été soulevées.

Ensuite, ce type d'essais a été très utilisé, toujours dans le but de faire des mesures sur de petits éléments mécaniques, que ce soit pour la micro-électronique [69], les systèmes micro-électromécaniques [74], les revêtements [80][81][82], ou bien pour faire un lien entre propriétés mécaniques et microstructure du matériau [34][83][84][85][86].

II-3.2.2. Equipements nécessaires

La mise en place de ce genre de micro-essais mécaniques mobilise différents équipements, leur principe de fonctionnement est brièvement décrit ici.

- Microscope électronique à balayage (MEB)

Dans un Microscope Electronique à Balayage (MEB), un faisceau d'électrons est focalisé par des lentilles électromagnétiques sur l'échantillon. Ces électrons interagissent avec la matière de l'échantillon, dans un volume fini, appelé poire d'interaction. Plusieurs particules et rayonnements sont réémis : électrons secondaires, rétrodiffusés ou encore électrons Auger et rayons X (Figure II-19).

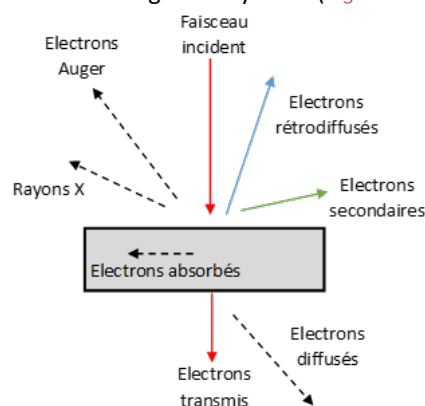


Figure II-19 : Schéma des différentes particules et rayonnements émis après interaction entre le faisceau électronique incident et l'échantillon dans un MEB.

Une partie des électrons du faisceau incident rencontre les nuages électroniques d'atomes de l'échantillon et cède une part de leur énergie à un électron de la bande de conduction. L'atome est alors ionisé par éjection de cet électron, appelé électron secondaire. Celui-ci est peu énergétique (environ 50 eV) et donc ne traverse qu'un faible volume de matière (quelques nanomètres). Grâce à une différence de potentiel, il est possible de collecter ces électrons sur un détecteur, ce qui formera alors une image. L'information étant très superficielle, une petite

variation de rugosité entraîne un contraste visible sur l'image. Ce type d'électron est donc très utilisé pour imager la surface ou avoir des informations sur la topologie d'un échantillon. C'est le type d'imagerie électronique le plus utilisé dans cette étude.

Une autre partie des électrons du faisceau incident interagit de façon quasi élastique avec les noyaux des atomes de l'échantillon visé. Des électrons sont ainsi réémis avec une faible perte d'énergie et sont donc beaucoup plus énergétiques que les électrons secondaires. Ce type d'électrons est sensible au numéro atomique des atomes de l'échantillon : les atomes lourds réémettent plus d'électrons que des atomes plus légers. Lorsqu'une image est réalisée avec des électrons rétrodiffusés, il y a donc un contraste de phase : les atomes légers apparaîtront plus foncés que des atomes plus lourds.

■ Sonde ionique focalisée (FIB) [87]

Le fonctionnement de la sonde ionique focalisée, souvent appelée *FIB* pour « *Focused Ion Beam* », ressemble à celui du MEB. Dans le *FIB*, c'est un faisceau d'ions qui est focalisé et dirigé sur la surface de l'échantillon (*Figure II-20*). En général, les ions utilisés sont des ions gallium. Une source liquide de ce métal goutte sur une aiguille et grâce à un champ électromagnétique, des ions sont extraits. Etant beaucoup plus lourds que les électrons, leur interaction avec les atomes de l'échantillon diffère de celle des électrons d'un MEB.

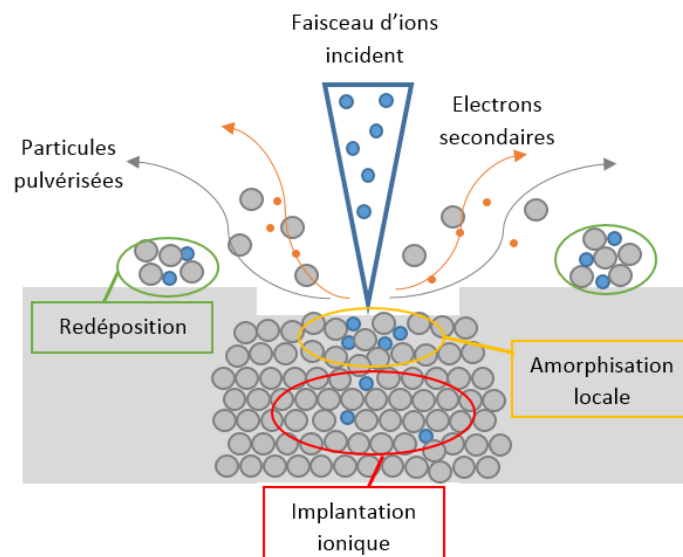


Figure II-20 : Schéma des principales interactions faisceau-matière présentes lors de l'utilisation du FIB. Adapté depuis [88].

Les chocs entre les ions énergétiques du faisceau et les atomes de l'échantillon provoquent l'éjection de particules. Les électrons émis de cette manière peuvent être collectés pour générer une image dite « ionique ». De plus, certains atomes de l'échantillon sont éjectés du solide (*Figure II-20*). L'application d'un fort courant ionique, c'est-à-dire d'un débit d'ions important, permet de favoriser ce phénomène en augmentant le nombre de chocs. Associée à des tilts et des rotations adaptées de la platine portant le matériau, il est alors possible d'effectuer un usinage précis et local de la matière. Cet effet dépend fortement du substrat, l'interaction ions-matière étant très influencée par le numéro atomique de la matière visée. Il est souvent utilisé pour réaliser des micro-usinages, particulièrement utiles dans l'industrie des semi-conducteurs, ou encore pour réaliser des lames minces pour un Microscope Electronique en Transmission.

D'autres ions, propulsés avec une forte énergie vers l'échantillon, pénètrent dans la matière et leur volume n'étant pas négligeable, perturbent l'organisation du matériau cible. Dans le cas où celui-ci est cristallin, les premiers nanomètres d'atomes en surface subissent des chocs qui les déplacent de leur position dans le cristal, détruisant l'organisation du réseau : la matière devient localement amorphe (*Figure II-20*). Quelques dizaines de nanomètres sous cette couche amorphe, des ions pénètrent en moins grande quantité, la majorité étant déjà stoppée. Ces ions sont introduits dans le réseau cristallin, il y a une modification des propriétés locales de la matière, sans destruction complète de son organisation : c'est l'implantation ionique (*Figure II-20*). La taille de la zone endommagée dépend du matériau visé, mais aussi de la tension d'accélération des ions. La tension dicte

l'énergie donnée aux ions, alors que le courant représente le débit d'ions. Si les paramètres sont correctement maîtrisés, c'est-à-dire le taux d'abrasion limité et le taux d'implantation favorisé, ce phénomène peut être utilisé pour doper le matériau [88].

Lors de l'abrasion du matériau, une partie de la matière pulvérisée est évacuée, tandis qu'une autre est redéposée un peu plus loin en un amas amorphe et riche en gallium (*Figure II-20*). Selon la configuration de l'usinage, cet effet peut être gênant. Plus le courant ionique est grand, plus la redéposition est volumineuse. Souvent, un courant ionique élevé est utilisé dans une première étape pour dégager beaucoup de matière, et un second passage à plus faible courant permet d'évacuer la matière redéposée. Il est aussi possible de réduire ou bien d'amplifier cette déposition en jouant sur le mode de balayage du faisceau. Si le faisceau balaye lentement une zone de la gauche vers la droite, beaucoup de matière sera redéposée à sa gauche, ce qui forme une fosse avec un fond penché (*Figure II-21 - a₁*). Par contre si le faisceau balaye plusieurs fois la même zone, avec un mode de balayement « serpentín », la fosse est moins profonde, mais le fond est plat (*Figure II-21 - a₂*).

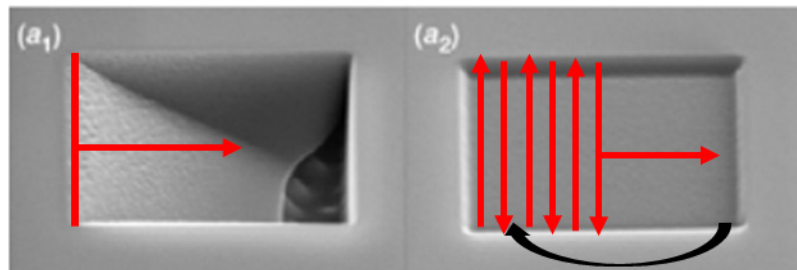


Figure II-21 : Images MEB d'une fosse usinée au FIB. (a₁) : Balayage en une passe et lentement de gauche à droite : la matière redéposée derrière le faisceau entraîne un fond penché. (a₂) : Balayages rapides et répétées, en mode serpentín, entraînant un fond plat [88].

Le faisceau est conique, et son angle d'ouverture est d'autant plus grand que le courant employé est important. La conséquence la plus évidente est la forme oblique des « murs » d'une fosse obtenue par balayage du faisceau (*Figure II-22*). Il est cependant possible de limiter cette forme en utilisant un courant ionique plus faible, et parfois il est possible de corriger ce défaut en inclinant l'échantillon de quelques degrés (*Figure II-22*).

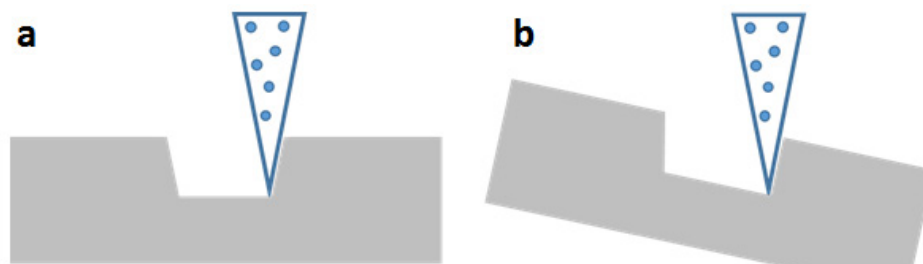


Figure II-22 : Schéma montrant la conicité du faisceau ionique et : (a) ses conséquences sur la forme de l'usinage ; (b) la correction de cet effet par inclinaison de l'échantillon.

▪ Diffraction d'électrons rétrodiffusés (EBSD)

La diffraction d'électrons rétrodiffusés, ou *EBSD* pour *Electron BackScatter Diffraction*, est une technique de caractérisation de l'orientation cristallographique d'un matériau. Cette technique utilise les électrons émis par la colonne électronique d'un MEB. Une partie des électrons incidents, sous certaines conditions, sont rétrodiffusés et s'échappent de l'échantillon en diffractant selon les conditions de Bragg. Ces électrons peuvent être utilisés pour exciter un écran phosphorescent, ce qui formera un cliché de diffraction, collecté ensuite par une caméra. Avec ce cliché, il est possible de retrouver l'orientation cristalline de la matière interagissant avec le faisceau électronique. Pour réaliser de telles mesures, l'échantillon doit être méticuleusement poli et doit être incliné à un angle important, en général de 70° par rapport à l'axe de la colonne électronique (*Figure II-23*).

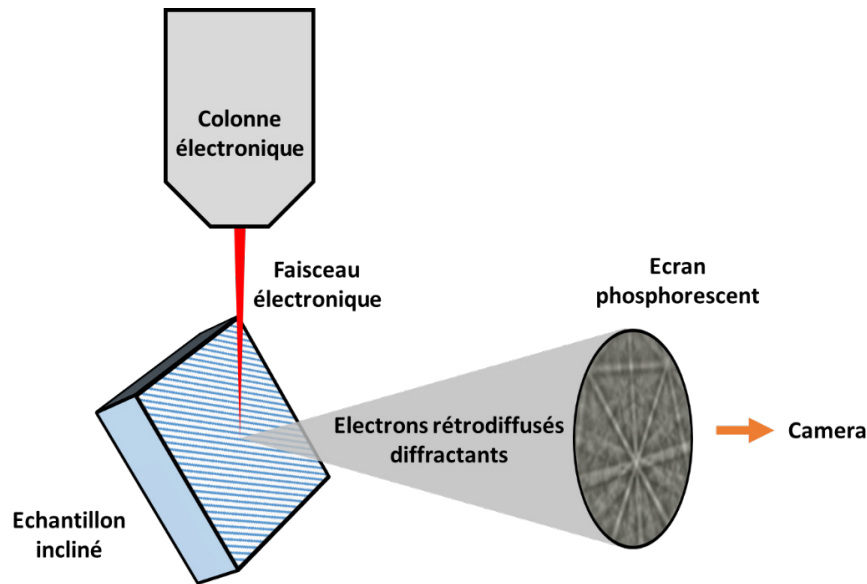


Figure II-23 : Schéma de fonctionnement de la diffraction d'électrons rétrodiffusés (EBSD), adapté depuis [89].

▪ Nano-indenteur

Pour solliciter en flexion des micro-éprouvettes, un appareil d'indentation peut être utilisé. Mais dans ce cas, la précision attendue est telle qu'il faut utiliser un « nano-indenteur ». Cet appareil doit être instrumenté, c'est-à-dire qu'il enregistre une courbe force-déplacement lors de l'essai. Le déplacement mesuré dans ce cas est la somme de la pénétration de la pointe dans l'éprouvette et de la flexion de celle-ci. Pour la visée, une précision spatiale de l'ordre du micromètre, à minima, est attendue, et donc doit être pilotée par un microscope. Deux options sont possibles :

- Une visée *ex situ* au MEB, avec un microscope optique (MO). La précision spatiale est moins importante, la sollicitation n'est pas visible au microscope et elle se fait dans l'air ambiant.
- Une visée *in situ* au MEB. Dans ce cas, la sollicitation peut être suivie au MEB, la localisation du point d'application de la force est bien maîtrisée et le chargement se fait sous vide.

II-3.3. Préparation des micro-éprouvettes de flexion

II-3.3.1. Préparation de surface

La préparation de surface de l'échantillon se fait souvent par polissages mécaniques successifs, que ce soit sur un matériau métallique [90][83] ou bien céramique [34][91]. Il est poli avec des suspensions diamantées dont la taille de particules diminue jusqu'à 1 μm , puis un polissage vibratoire est appliqué avec une solution colloïdale de silice afin de limiter au maximum les contraintes résiduelles induites par le polissage [92][93]. Pour les matériaux céramiques, certains auteurs ajoutent, afin de réduire les effets de charges avant l'usinage *FIB*, un revêtement conducteur : cela peut être une couche de 10 nm de carbone (sur de la zircone [94] ou de l'alumine [85][86]) ou encore une couche de 10 nm de platine (sur alumine [95]).

II-3.3.2. Réduction des dégâts du faisceau ionique

Le faisceau ionique endommageant localement la matière, Motz *et al.* [79] proposèrent de réduire peu à peu les courants utilisés lors de la fabrication (jusqu'à 200 pA), les plus faibles courants permettant d'abraser la zone de matière redéposée et/ou affectée par les ions, tout en créant une nouvelle zone plus fine. Par la suite, pratiquement tous les auteurs ont utilisé ce principe, certains allant jusqu'à des courants de 50 pA pour affiner délicatement les surfaces de l'éprouvette [80]. Cependant, il est intéressant de noter que la tension d'accélération utilisée est toujours de 30 kV. Diminuer celle-ci entraînerait en théorie une diminution de la zone affectée ioniquement, mais cela réduit aussi drastiquement le taux d'usinage du faisceau, ce qui est peu intéressant.

Du fait de la forme conique du faisceau ionique incident (Figure II-22), les côtés des poutres ne sont pas exactement perpendiculaires à la surface (Figure II-24). Il est également relevé dans la littérature que sur une

poutre à section triangulaire ou pentagonale, l'angle de la partie inférieure de l'éprouvette n'est pas celui attendu, c'est-à-dire celui imposé par l'angle de la platine qui porte l'échantillon [95]. La réduction progressive des courants permet de réduire ces effets, car cela réduit la conicité du faisceau, mais ne les fait pas totalement disparaître. Pour cela, il est proposé de rajouter une inclinaison de quelques degrés sur la platine [85] qui permet de rattraper la conicité du faisceau et d'obtenir des côtés parfaitement droits (*Figure II-22*).

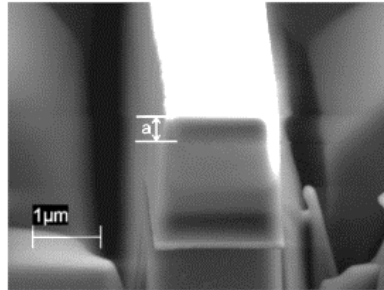


Figure II-24 : Image MEB d'un faciès de rupture d'une éprouvette pré-entallée avec des côtés verticaux qui présentent un léger angle à cause de la conicité du faisceau ionique utilisé [80].

II-3.3.3. Mesures des dimensions de l'éprouvette

Comme pour des mesures macroscopiques, la connaissance des dimensions de l'éprouvette est nécessaire afin de calculer soit la contrainte dans l'éprouvette, soit la ténacité du matériau (équation (II-7)). La première méthode qui fut proposée consistait à définir les dimensions de l'éprouvette avant sa préparation, puis de s'y tenir lors de la fabrication au *FIB* [78]. Cependant, il est difficile de maîtriser parfaitement les dimensions d'un objet fabriqué ainsi, et très rapidement les mesures furent effectuées au MEB, après la fabrication, sur chaque éprouvette, avec une précision largement inférieure au micromètre [79]. Pour mesurer la hauteur de la poutre, il faut incliner la platine avec un angle donné et compenser cet angle par une correction sur l'image [95]. Enfin, dans le cas d'une poutre pré-entallée, il est essentiel de mesurer la profondeur de l'entaille a . Pour une bonne précision, la mesure est effectuée après rupture de l'éprouvette (*Figure II-24*).

II-3.3.4. Tests des interfaces

Armstrong *et al.* [92] ont proposé de réaliser des mesures de ténacité via des micro-éprouvettes entaillées sur des joints de grains, le matériau testé étant du cuivre fragilisé par du bismuth. Les auteurs montrent qu'il est possible de réaliser les éprouvettes de façon à tester de telles interfaces directement sur le matériau massif, sans avoir recours à des bi-cristaux, comme le proposent Cui *et al.* [96]. Le joint de grain est sélectionné avec des images MEB, puis lors de l'excavation de la poutre, l'imagerie ionique permet de vérifier que le joint de grain reste bien perpendiculaire à la surface de la poutre (*Figure II-25 - a*). Pour ce type d'essai, il est particulièrement complexe de faire correspondre parfaitement le plan de l'entaille avec le plan du joint de grains. Pour remédier à ce problème, Kupka *et al.* [97] proposent, sur un alliage d'aluminium, une pré-entaille semi-circulaire qui initie la rupture sur l'interface (*Figure II-25 - b*). Dans ce cas, l'analyse n'est plus la même, car l'entaille ne peut pas être considérée comme une fissure.

Il est également possible, en utilisant le même principe, de mesurer la résistance, que ce soit la ténacité ou la contrainte à rupture, d'autres types d'interfaces, telles que l'interface d'un métal avec sa couche d'oxyde [98], ou bien l'interface avec un précipité ou une autre phase [99][100].

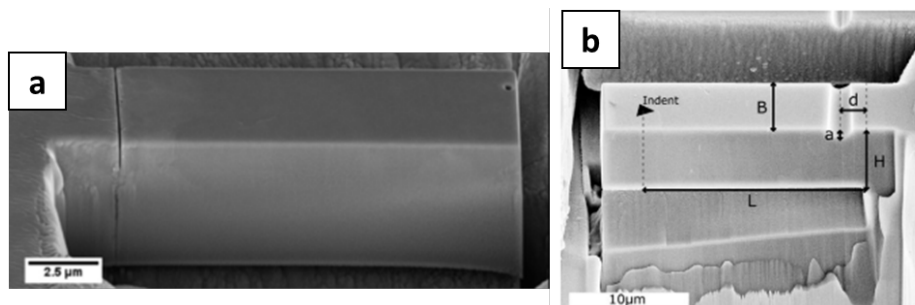


Figure II-25 : Image MEB d'une micro-éprouvette pré-entallée sur un joint de grain : (a) entaille fine [92] ; (b) entaille large [97].

II-3.4. Fabrication d'entailles

II-3.4.1. Différentes géométries d'entailles

Réaliser une entaille dans l'éprouvette sert à créer un défaut de géométrie contrôlée. De ce fait, il est important qu'elle soit aussi fine que possible et donc qu'elle ait un rayon de fond d'entaille ρ faible [36]. Pour cela, il existe plusieurs possibilités abordées dans la littérature.

Le plus simple est de réaliser « un trait » avec le faisceau ionique qui a une incidence normale et avec un faible courant (très souvent 10 pA [95], mais pouvant descendre jusqu'à 1 pA [78]), afin d'avoir une entaille la plus fine possible. Le principal inconvénient de cette méthode concerne les effets de bords produits. Sur les bords de la poutre le faisceau abrase mieux la matière et donc l'entaille n'est pas parfaitement droite, elle est courbe (*Figure II-26 - a*).

Pour remédier à cela, une entaille appelée « bridge » a été proposée (*Figure II-26 - b*). Le principe de cette entaille est de réaliser une excavation de la matière seulement au centre de la poutre, toujours avec un courant faible de 10 pA. Cette fois l'entaille ne va pas jusqu'aux côtés de l'éprouvette [90][101], mais lors de la sollicitation, la concentration de contrainte très élevée dans ces parties non-entaillées entraînerait la rupture des fins ligaments latéraux [80]. Finalement, le fond d'entaille devrait être droit, mais il est difficile de vérifier cette hypothèse.

Une autre solution consiste à placer parallèlement le faisceau par rapport à la surface pour réaliser l'entaille [84] (*Figure II-26 - c*). Il y a un risque que le fond ne soit pas droit à cause de la conicité du faisceau, mais une sur-inclinaison de la platine permet de rattraper cet angle [85]. La principale contrainte est la nécessité de placer l'éprouvette sur un bord accessible de l'échantillon. De plus, il faut utiliser un courant important (au moins quelques nA) pour traverser l'éprouvette, et inévitablement le fond d'entaille est large et arrondi.

Un dernier type d'entaille a été présenté par Mueller *et al.* [85][86], qui proposèrent d'adapter l'entaille chevron à l'échelle microscopique grâce à différents tilts de platines (*Figure II-26 - d*). Dans ce cas, la largeur de l'entaille se doit d'être également la plus fine possible, et donc les auteurs utilisent un courant de 10 pA. Cependant, comme il faut enlever plus de matière qu'une entaille simple, il faut parfois utiliser un courant de 40 pA et faire une entaille plus large. Dans ce cas, le faisceau n'a pas une incidence normale et traverse la largeur de l'éprouvette. Comme le faisceau a une forme conique, la largeur de l'entaille, et donc le rayon de fond d'entaille, est nécessairement plus important que pour une incidence normale avec un même courant ionique.

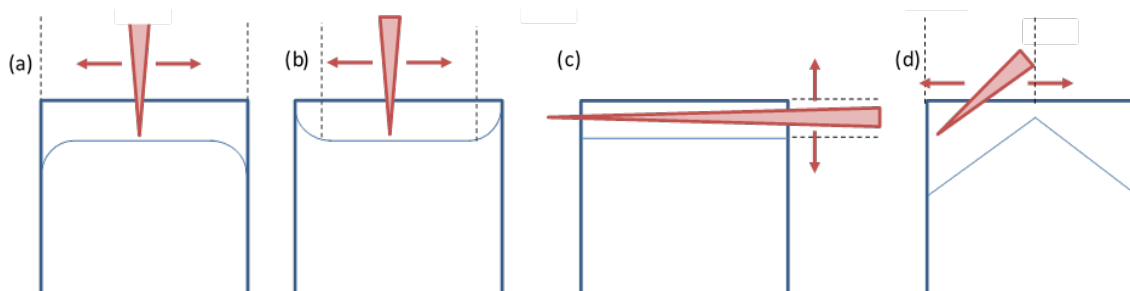


Figure II-26 : Schéma de fabrication des entailles au FIB. (a) entaille simple réalisée avec une incidence normale du faisceau ; (b) entaille « bridge » ; (c) entaille simple réalisée de côté ; (d) entaille chevron.

II-3.4.2. Effet du rayon de fond d'entaille

Pour des mesures de ténacité, dans la plupart des cas, l'entaille est réalisée avec un courant très faible. Ainsi, le rayon de fond d'entaille ρ est souvent considéré comme négligeable pour un courant de 10 pA [78] ou moins.

Cependant, au vu des dimensions de l'éprouvette, le rayon de fond d'entaille ρ n'est peut-être pas négligeable devant les autres grandeurs. Matoy *et al.* [80] ont réalisé des mesures au MEB du fond d'une entaille grâce à une coupe transverse au FIB de celle-ci. Ils estiment qu'un courant de 5 pA entraîne un ρ de 10 nm environ sur de la silice amorphe. Ils corrigent la ténacité mesurée par une approche proposée par Picard *et al.* [102]. Cette méthode a été développée dans le cadre d'éprouvettes standards macroscopiques de ténacité, afin de corriger l'erreur induite par la forme de l'entaille réalisée à la scie diamantée. Le principe est d'utiliser la contrainte à rupture σ_R de ce même matériau déterminée par flexion d'une éprouvette non-entaillée, de mesurer la largeur

de l'entaille réalisée ρ et la ténacité K_{IC}^{app} du matériau en faisant l'hypothèse que l'entaille est une fissure parfaite. Le rapport $\sigma_R \cdot \rho / K_{IC}^{app}$ permet de déterminer un facteur correctif à appliquer sur la ténacité mesurée K_{IC}^{app} . Cette correction entraîne une diminution d'environ 20% des ténacités mesurées sur des entailles de type « bridge » (Figure II-26 - b). D'autres auteurs ont également repris cette méthode de correction, ce qui entraîne un facteur correctif de 0,97 pour un courant ionique de 50 pA dans le cas d'un spinelle $MgAl_2O_4$ [91], et 0,98 pour un courant de 30 pA sur un revêtement de Ni-W [103].

Norton *et al.* [95] ont également utilisé des coupes transverses *FIB* d'entailles, mais cette fois ils ont observé le fond d'entaille avec un MET, ce qui améliore la précision des mesures du rayon de courbures en fond d'entaille (Figure II-27). Pour différents courants ; 10 pA, 100 pA et 1000 pA; les rayons de fond d'entailles sont respectivement d'environ 15 nm, 32 nm et 76 nm sur de l'alumine. Les résultats des mesures de ténacité sur des entailles simples (Figure II-26 - a) utilisant ces courants sont respectivement de 3,8 MPa.m^{0,5}, 4,6 MPa.m^{0,5} et 5,9 MPa.m^{0,5}. Les auteurs en concluent donc que le rayon de fond d'entaille influence la mesure. Pour quantifier cette erreur, ils ont utilisé une approche théorisant une fissure en fond d'entaille qui engendre la rupture à partir d'une longueur critique de propagation δa [104]. Elle prévoit une augmentation de la ténacité mesurée en fonction du rayon de fond d'entaille. Finalement une correction d'environ -10% a été appliquée aux mesures effectuées sur entailles réalisées à des courants de 10 pA.

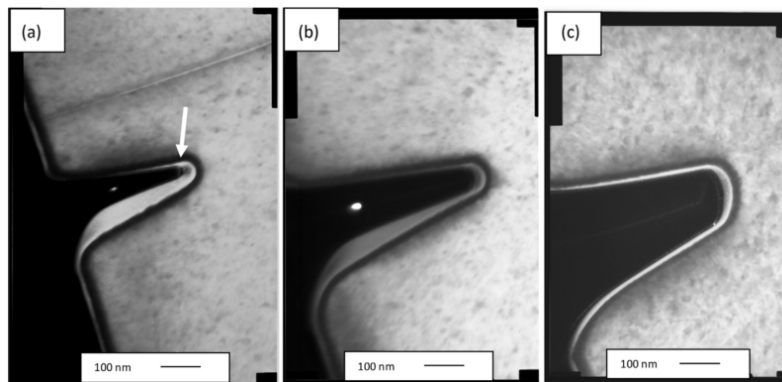


Figure II-27 : Images MET de coupes transverses d'entailles réalisées au FIB sur Al_2O_3 avec des courants de 10 pA (a), 100 pA (b) et 1000 pA (c) [95].

Best *et al.* [105] ont réalisé une étude similaire sur du CrN en mesurant au MEB le rayon ρ d'entailles « bridge » (Figure II-26 - b) usinées avec des courants de 1 pA, 10 pA et 100 pA. A cela s'ajoute un autre type de mesure de ténacité, le « pillar-spitting », qui n'utilise pas d'entaille. Ils considèrent donc que ρ est nul dans ce cas. Les résultats montrent une dépendance de la ténacité mesurée en racine carré du courant utilisé. De plus, les auteurs montrent qu'un traitement thermique (500°C) de l'éprouvette pré-entallée avant la sollicitation entraîne une forte diminution de la ténacité mesurée (de l'ordre de 100%), ce phénomène étant confirmé par Norton *et al.* sur de l'alumine [95]. Ils proposent alors l'hypothèse que ce traitement thermique agit sur le gallium implanté en fond d'entaille et donc que ces ions influenceraient fortement la mesure de ténacité. Pour appuyer cette théorie, Best *et al.* [106] ont également réalisé la même étude en utilisant un FIB avec différents ions : Ga, Xe et He. La variation des courants et des sources entraîne des rayons de fond d'entaille différents, mais également des ténacités différentes (Figure II-28). Cette fois, la ténacité n'est plus une fonction croissante du rayon de fond d'entaille. Les auteurs en concluent donc qu'il n'y a pas seulement un effet de courbure, mais aussi une influence de la nature des ions implantés.

Notching ion	Probe current	Notch depth	Root radius	Samples	K_{IC}
	pA	nm	nm	#	MPa m ^{0,5}
Ga	10 pA	607 ± 121	15–25	10	3.42 ± 0.26
Xe	10 pA	318, 312	100–110	2	2.07, 2.70
Xe	1 pA	443 ± 31	35–50	3	2.44 ± 0.16
He	12 pA	183 ± 15	<5	3	2.75 ± 0.10

Figure II-28 : Tableau récapitulatif des valeurs de ténacité en fonction des courants et du type d'ions utilisés pour l'usinage FIB sur du CrN [106].

II-3.4.3. Effet de l'implantation ionique

Norton *et al.* [95] ont étudié l'influence du faisceau gallium sur les mesures de ténacité obtenues par flexion de micro-éprouvettes entaillées au *FIB* sur de l'alumine poly- et monocristalline. Les images MET du fond de différentes entailles produites par des courants ioniques allant de 10 pA à 1000 pA montrent que la zone implantée par les ions gallium est de l'ordre de 20 nm (liséré noir sur la *Figure II-27*). Cette profondeur d'implantation ne varie pas entre les différents courants utilisés, car elle dépend uniquement de la tension d'accélération employée, ici de 30 kV. Une analyse dispersive en énergie (*EDX*) permet de mettre en évidence une concentration en gallium plus forte dans cette zone que dans le reste du matériau. La quantification de cette concentration est cependant peu précise à cause de la taille de la zone visée qui est plus petite que la taille de sonde de l'*EDX*. L'analyse par nano-indentation de la zone implantée a permis de mettre en évidence une dureté supérieure dans les 20 premiers nanomètres : la dureté est 2,0 GPa plus élevée pour une profondeur d'indentation de 5 nm, puis décroît jusqu'à atteindre la valeur du matériau massif à 20 nm ou plus de profondeur. De plus, les auteurs fabriquent des lames minces au *FIB* sur de l'alumine préalablement implantée en gallium : elles se courbent sous l'influence du faisceau *FIB*. Les auteurs attribuent la dureté plus élevée en surface et la courbure des lames minces à des contraintes résiduelles de compression dans le matériau. Ils estiment celles-ci en mesurant la courbure des lames minces au MEB, à près de 16 GPa. Les auteurs notent une division par près de 2,5 de la ténacité mesurée après un traitement thermique (entre 1000 ° et 1200 °C) des éprouvettes entaillées. Pourtant, la morphologie des fonds d'entaille n'a pas été modifiée par ces traitements. Finalement, les auteurs concluent qu'il y a une forte influence du faisceau sur les mesures de ténacité pour l'alumine. Elle serait due à une implantation des ions gallium qui génère de fortes contraintes résiduelles de compression, mais qui peuvent être relaxées par un traitement thermique.

Best *et al.* [106] ont également étudié l'influence des ions gallium sur la mesure de ténacité, mais pour un autre matériau : du nitrure de chrome CrN avec des grains submicroniques. Ils ont montré qu'un traitement thermique (500°C) entraîne l'apparition de contrastes au niveau des joints de grains du matériau, ainsi qu'une nette diminution de la ténacité mesurée (division par environ 2). De plus, les éprouvettes ayant subi un traitement thermique ont un mode de rupture intergranulaire, contre un mode intragranulaire avant traitement thermique. Ils attribuent ces observations à la diffusion du gallium avec la température, qui s'aggrave au niveau des joints de grains et les fragilisent. Enfin, des essais avec différentes sources ioniques [105] pour la réalisation des entailles montrent que la nature des ions implantés influe sur la ténacité mesurée (*Figure II-28*).

D'un autre côté, Jaya *et al.* [69] ont montré que différents essais micromécaniques utilisant le *FIB* donnent des résultats de ténacité en bon accord entre eux, mais également en accord avec des valeurs obtenues par d'autres méthodes macroscopiques. Ils estiment alors que, sur du silicium monocristallin, il n'y a pas d'influence significative de l'implantation ionique avec un courant ionique de 10 pA et une tension de 30 kV utilisés pour réaliser les entailles.

Finalement, il est difficile de conclure sur l'influence de l'implantation des ions gallium dans la matière. Ces résultats restent à compléter, puisque les auteurs arrivent à des conclusions différentes selon le matériau étudié. Il semblerait donc que l'effet des ions gallium soit dépendant du matériau testé. Il faut cependant noter que l'influence du faisceau ionique est moindre sur les mesures de contraintes à rupture. La matière n'est en effet endommagée que sur une fine couche de quelques nanomètres, et la surface en traction, lieu d'initiation de la rupture, n'est pas particulièrement soumise au faisceau, contrairement à une entaille.

II-3.4.4. Entaille chevron

Mueller *et al.* [85] ont présenté des essais de ténacité sur matériaux fragiles qui utilisent des entailles chevrons adaptées à des essais de flexion de micro-éprouvettes à section carrée fabriquées au *FIB*. Les mêmes auteurs ont également montré qu'il est possible d'utiliser ce type d'entaille sur des poutres à géométrie triangulaire [86]. L'intérêt d'une telle géométrie réside dans le fait qu'en théorie, une fissure se propage depuis le sommet du chevron jusqu'à une profondeur critique a_c à partir de laquelle l'éprouvette rompt complètement (*Figure II-29*). La ténacité est alors mesurée depuis une fissure qui s'est propagée, et non pas depuis une entaille, ce qui évite, d'une part l'effet de rayon de fond d'entaille : la fissure est parfaitement acérée ; et d'autre part l'endommagement lié au faisceau ionique : la rupture se fait depuis une zone peu ou pas affectée par le faisceau.

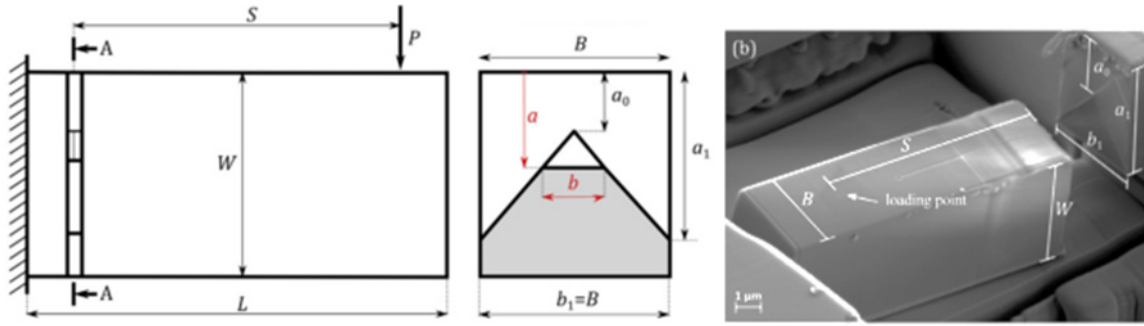


Figure II-29 : Schéma d'une micro-éprouvette réalisée au FIB et l'image MEB de cette éprouvette après rupture [85].

Dans cette géométrie, la mesure des dimensions de l'entaille se fait également après rupture de la poutre. Par contre a_c ne peut être déterminée expérimentalement, car le changement de régime de propagation stable/brutale ne laisse pas de trace particulière visible sur la face fracturée (Figure II-30).

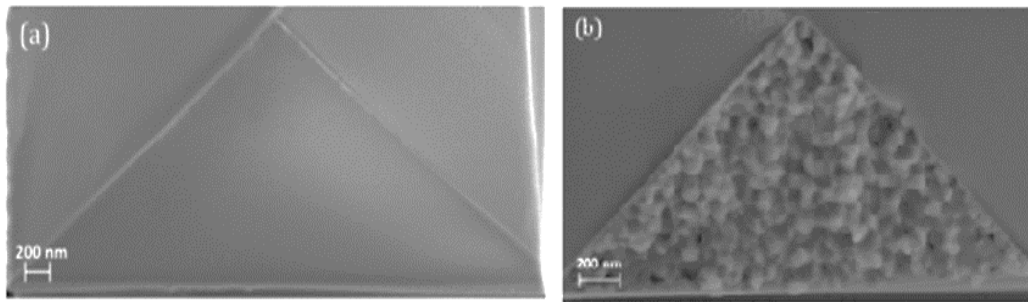


Figure II-30 : Images MEB du faciès de rupture d'une éprouvette avec entaille chevron usinée dans : (a) silice fondue ; (b) alumine (grains nanoscopiques) [85].

Pour déterminer la profondeur a_c , les auteurs proposent de calculer avec une modélisation numérique par éléments finis de l'essai. La force appliquée à l'éprouvette est égale à la force à rupture mesurée expérimentalement. Au premier pas de calcul, l'entaille est intacte, la souplesse C de l'éprouvette est calculée. Puis, à chaque itération, une petite profondeur de fissure da est incrémentée et la souplesse C est recalculée. Cette routine de calcul permet d'obtenir le terme dC/da et donc K_I pour différentes valeurs de a (Figure II-29). K_I peut alors se mettre sous la forme de l'équation (II-37) :

$$K_I = \frac{F}{B \sqrt{W}} F_v(\tilde{a}) \quad (II-37)$$

Il est ensuite possible de tracer $F_v(\tilde{a})$ en fonction de $\tilde{a}$ (Figure II-31) ($\tilde{a}$ étant la profondeur relative a/W).

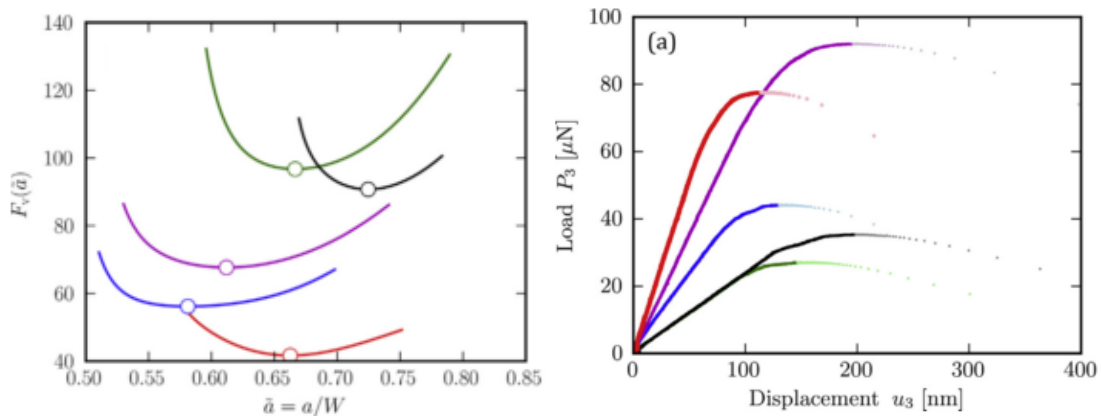


Figure II-31 : (A gauche) Tracés des fonctions $F_v(\tilde{a}) = f(\tilde{a})$ calculées avec une modélisation éléments finis pour plusieurs éprouvettes. (A droite) Courbes force-déplacement obtenues expérimentalement. Chaque couleur représente un essai différent sur silice fondue [85].

La fissure passe d'un état de propagation stable à instable quand dK_I/da devient positif (partie II-1.4). Cette condition est remplie, et donc la fissure devient instable, lorsque la fonction F_v est croissante avec a . La

modélisation numérique de l'essai montre que cette fonction est en forme de « U » avec la profondeur relative $\tilde{a}$. La fissure est donc d'abord stable, puis passe à un état instable lorsque la dérivée de la fonction s'annule pour une valeur a_c . Il faut noter que, sauf géométrie particulière, a_c n'est pas égale à a_1 (Figure II-29). Les auteurs calculent alors la ténacité K_{Ic} par la formule (II-37) pour la valeur particulière $F_v(\tilde{a}_c)$.

La détermination de la profondeur de la fissure au moment de la rupture est réalisée numériquement et est difficilement vérifiable expérimentalement. Cependant, cette propagation stable avant rupture finale peut se remarquer sur les courbes force-déplacement mesurées lors de la flexion des poutres. Pour une force environ égale à 80% de la force maximum, la courbe n'est plus linéaire, signe qu'une fissure se propage dans le chevron (Figure II-31).

II-3.5. Sollicitation mécanique des micro-éprouvettes

Une fois l'éprouvette réalisée et ses dimensions mesurées, il reste à la solliciter en flexion jusqu'à sa rupture. Au vu de ses dimensions, un appareil précis est nécessaire : les forces à mesurer sont de l'ordre du millinewton, les déplacements du micromètre et la précision spatiale pour le point d'application de la force doit être inférieure au micromètre.

II-3.5.1. Type de sollicitation

Pour répondre à de telles contraintes, l'outil principalement utilisé est le nano-indenteur [63][74][85], bien que parfois un micromanipulateur équipé d'une cellule de force soit aussi employé [101]. Dans cette version micro ou nanométrique de l'indentation, les pointes sont suffisamment petites pour réussir à solliciter précisément les éprouvettes.

Les premiers essais furent effectués [78][79] *ex-situ* au MEB, et donc la visée se faisait au microscope optique. Les nano-indenteurs étant précis, ce type d'appareil est très efficace et bien plus accessible qu'un appareil *in situ*. De plus, la réalisation de marques au *FIB* sur la poutre permet d'augmenter la précision spatiale du point d'application de la force [80], particulièrement quand elles sont combinées au mode de balayage par contact d'un nano-indenteur qui permet de cartographier la topographie de surface [85]. Cependant, dans le cas d'essais *ex situ*, les essais sont réalisés à l'air, et certains auteurs soulèvent la question de l'influence de la croissance lente de fissure favorisée par l'humidité ambiante [95].

D'autres auteurs utilisent un nano-indenteur *in situ* dans le MEB (Figure II-32) et travaillent donc sous vide [69]. La précision de placement de la pointe est meilleure qu'avec un microscope optique, cela permet également de voir s'il y a de la plasticité avant rupture [84], de faire de la corrélation d'images pour mesurer les déplacements de la poutre [107], ou bien de suivre la propagation de la fissure [97]. Pour pouvoir visualiser correctement l'éprouvette, il faut cependant que le système soit orienté favorablement dans la chambre du MEB (Figure II-32).

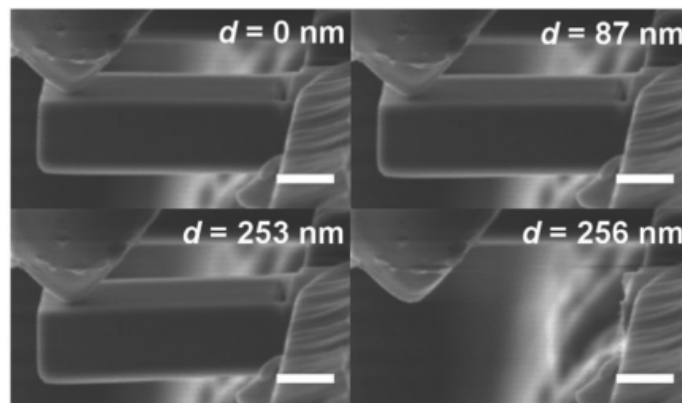


Figure II-32 : Images MEB de la sollicitation en flexion d'une micro-éprouvette réalisée au FIB [105].

Le choix de la tête d'indentation est aussi important pour les mesures, il peut se porter sur différents types de pointes :

- **Berkovich** : l'angle au sommet étant plutôt large (environ 65° (Figure II-11)), la visualisation *in situ* est parfois compliquée et il faut dégager un large espace au *FIB* autour de la poutre pour que la pointe ne

touche pas la surface adjacente. Cependant, cette tête permet un positionnement très précis, ce qui en fait une pointe souvent utilisée pour ce genre d'essais [78][95]. La pénétration de l'indent dans la matière doit être corrigée pour toute mesure de déplacement.

- **Cube Corner** : cette pointe est particulièrement effilée (35° d'angle au sommet), ce qui donne une très bonne précision d'appui et une bonne visualisation *in-situ*. Cependant la pointe pénètre beaucoup la matière, et demande donc de grosses corrections de déplacements [35].
- **Pointe cono-sphérique** : la pointe est conique et se termine par une tête quasi-sphérique. Le principal avantage de celle-ci est qu'aucune correction n'est nécessaire car la pénétration dans la poutre est négligeable. N'étant pas pointue, elle fait des marques imperceptibles au microscope optique, ce qui rend impossible la calibration de la précision quand l'essai est *ex situ*. Cette pointe est cependant très utilisée pour les essais *in situ* au microscope [69][105].
- **Pointe cylindrique (ou poinçon plat)**. Ce type de pointe ne pénètre pas du tout la matière, cependant le point d'application de la force n'est pas parfaitement connu, la zone de contact étant plus large que les autres pointes. Cela en fait une pointe peu utilisée pour la flexion de poutre, mais qui peut être intéressante pour d'autres types d'essais micromécaniques, comme la compression de micro-piliers.

II-3.5.2. Anisotropie des propriétés mécaniques

Les éprouvettes étant de dimensions micrométriques, l'échelle de l'essai entraîne l'apparition de l'influence de l'orientation des grains, de leur taille et des joints de grains.

La plupart des études portant sur l'anisotropie ont été réalisées sur des matériaux métalliques. Elles ont porté sur l'étude du module de Young de flexion [108], sur la ténacité des différents plans cristallins [109] ou encore sur les propriétés en plasticité [83] en fonction de l'orientation cristalline, soit d'un monocristal, soit d'un grain caractérisé par *EBS*D.

Dans les matériaux fragiles, il y a moins d'études sur les effets d'anisotropie ou d'orientation cristallographique. Betchtle *et al.* [110] ont orienté leurs échantillons dans un matériau hiérarchisé ; l'émail dentaire. Ils relevèrent des ténacités différentes selon les zones et l'orientation des fibres biologiques, bien que la dispersion des valeurs soit très importante. De plus, Norton *et al.* [95] réalisèrent leurs essais de ténacité sur de l'alumine monocristalline dans des plans spécifiques afin de pouvoir comparer les résultats entre eux au cas où la ténacité soit influencée par le plan cristallin sollicité. Cependant, ils ne relèvent aucune différence significative de ténacité entre les deux plans testés.

II-3.5.3. Propagation lente de la fissure

La propagation lente de fissure (ou *SCG* pour *Subcritical Crack Growth*), lors d'un essai de ténacité est un phénomène bien connu sur certaines céramiques sollicitées dans un environnement présentant par exemple de l'humidité (partie II-2.4.3). Parce que la flexion de micro-éprouvettes peut se faire *ex situ* au microscope, et donc dans l'air, ou bien parce que l'échantillon est parfois sorti du MEB avant de faire les essais *in situ*, certains auteurs ont essayé de quantifier l'ampleur du phénomène de *SCG* sur les mesures de ténacité par micro-flexion.

Mueller *et al.* [85] expliquent qu'il est important de bien choisir sa vitesse de chargement pour des éprouvettes présentant des entailles chevron. Si elle est trop rapide, il peut y avoir des effets dynamiques de propagation de fissures, qui peuvent fausser la mesure. Si elle est trop lente, la mesure s'expose à des erreurs dues à la *SCG*. Des matériaux sensibles à ce phénomène sont utilisés : de l'alumine et de la silice fondue, et la sollicitation est effectuée sous air. Ils expliquent qu'une vitesse de chargement entre 1 $\mu\text{N/s}$ et 3 $\mu\text{N/s}$ est suffisamment importante pour limiter les erreurs à moins de 5%.

Zagar *et al.* [111] ont réalisé une analyse théorique de la *SCG* appliquées aux essais de micromécanique. Sur du quartz fondu, en estimant une vitesse de diffusion de l'eau dans la fissure, ils concluent que pour avoir une erreur induite par la *SCG* inférieure à 5% de la ténacité mesurée, une vitesse de chargement d'au moins 273 mN/s doit être appliquée. Cette vitesse seuil a été déterminée pour des dimensions classiques de micro-éprouvettes et augmente avec leur volume. Une entaille chevron permet de réduire la vitesse de sollicitation tout en gardant la même précision sur la mesure de ténacité : pour une éprouvette de la même géométrie, la vitesse de chargement limite devient 16 mN/s.

Norton *et al.* [95] ont également mis en évidence l'influence de la SCG sur des mesures de ténacité réalisées sur de l'alumine monocristalline. Un premier essai de flexion de micro-éprouvette est réalisé dans l'air, donc à l'humidité ambiante, un second sur une poutre où quelques gouttes d'eau ont été déposées, et un dernier avec des gouttes d'huile. Les auteurs mesurent des ténacités qui varient selon l'essai, respectivement de $1,5 \text{ MPa.m}^{0,5}$, $0,9 \text{ MPa.m}^{0,5}$ et $3,5 \text{ MPa.m}^{0,5}$. Ils expliquent ces différences par la présence d'eau : sous huile, la vraie ténacité du matériau est mesurée, alors que sous air et sous eau, la corrosion sous contrainte par les molécules d'eau diminue la valeur de ténacité.

II-4. Conclusion

L'objectif de cette partie est de réaliser un état de l'art bibliographique de la caractérisation de la rupture dans les céramiques, nécessaire pour mener à bien les travaux de cette thèse. L'approche conceptuelle de la rupture pour les matériaux fragiles permet tout d'abord de poser les bases théoriques utiles pour cette étude. La bonne connaissance des méthodes macroscopiques de mesure est utile pour appréhender certaines problématiques des essais micromécaniques communes entre les deux échelles. L'étude bibliographique des essais micromécaniques autres que l'indentation permet enfin de dégager un type d'essai et des conditions de tests adaptés à cette étude.

Au vu des différents essais présentés, la flexion de micro-éprouvettes à section pentagonale est la méthode retenue. Pour fabriquer ces éprouvettes, l'utilisation d'un MEB/*FIB* est nécessaire et un nano-indenteur est requis pour leur sollicitation. Le *FIB* utilisant des ions gallium, il ne faut pas oublier que les mesures pourraient être influencées par l'implantation ionique dans la matière ; cependant aucune tendance n'est clairement admise sur cette implantation et elle semble dépendre fortement du matériau testé.

L'étude bibliographique poussée de ce type de méthodes apporte une vision préliminaire des points clés à maîtriser. Elle aide également à anticiper les difficultés méthodologiques potentielles. Finalement, grâce à cette étude de la littérature, il est possible de proposer une ébauche du procédé de fabrication et de sollicitation des micro-éprouvettes :

- Une préparation de surface est nécessaire, typiquement par polissages mécaniques successifs, jusqu'à une qualité suffisante pour réaliser des mesures *EBSD*. Un film conducteur peut être nécessaire pour l'étude de matériaux isolants.
- L'impact induit par le *FIB* sur la matière doit être limité et pour cela plusieurs options sont envisageables :
 - Réduction progressive des courants ioniques utilisés au fur et à mesure de l'avancement des étapes d'usinage de l'éprouvette.
 - Application d'un léger angle d'inclinaison de l'échantillon par rapport au faisceau pour corriger la forme conique de celui-ci qui induit une obliquité des surfaces préparées.
 - Un mode de balayage du faisceau en plusieurs passes, qui permet de limiter les effets de redéposition du *FIB*.
- La mesure des éprouvettes au MEB après fabrication est la méthode la plus efficace pour la détermination de leurs dimensions.
- Deux types d'entaille sont à tester. L'entaille droite est attractive, car facile à fabriquer et à exploiter, cependant, elle présente souvent des défauts de fabrication, et est potentiellement affectée par l'implantation ionique. L'entaille de type chevron est également intéressante : elle est plus complexe à réaliser et à utiliser, mais permettrait de s'affranchir de l'implantation ionique.
- Pour la sollicitation mécanique de ces éprouvettes, la méthode la plus efficace semble être l'utilisation d'un nano-indenteur, à l'aide d'une pointe effilée du type Berkovich ou *Cube Corner*. L'utilisation de marques de repérage peut faciliter le placement de la pointe lors des essais.

CHAPITRE III

MISE EN PLACE DES METHODES SUR MATERIAU MODELE DE COMBUSTIBLE

Ce chapitre présente la mise en place et l'étude des techniques de caractérisation sur un matériau modèle de combustible. Les méthodes de mesures des propriétés à la rupture envisagées sont la nano-indentation et la flexion de micro-éprouvettes. Ces techniques ne sont pas conventionnelles, principalement de par l'échelle des essais, mais aussi de par le mode de fabrication des micro-éprouvettes. Le combustible irradié est tout d'abord un matériau complexe en raison de tous les phénomènes physiques intervenant en son sein lors de l'irradiation en réacteur. De plus, c'est un matériau dangereux car irradiant et contaminant, qui doit être manipulé derrière un mur de protection biologique et dans une boîte à gants étanche. Cela complexifie sa manipulation et augmente considérablement le temps nécessaire à la réalisation des essais. Pour ces raisons pratiques, l'étude préliminaire des méthodologies de caractérisation est d'abord développée sur un matériau modèle du combustible. La première étape est donc de sélectionner le matériau le plus adapté pour simuler l' UO_2 , le choix se portant finalement sur la zircone stabilisée en phase cubique 8Y-FSZ. Puis, le détail des données bibliographiques concernant ce matériau est réalisé, notamment sur ses propriétés mécaniques, pour pouvoir par la suite les comparer avec les résultats issus des méthodes développées. Ensuite, des travaux antérieurs portant sur la caractérisation en rupture par indentation sur zircone, sont décrits et permettent d'introduire les essais complémentaires d'indentation réalisés dans le cadre de cette thèse. Puis, l'étude complète des essais de flexion de micro-éprouvettes sur le matériau modèle est présentée. Finalement, un bilan de l'étude sur la zircone cubique est dressé, qui permet d'établir les recommandations pour transposer la méthode au combustible nucléaire.

III-1. Données préliminaires

Pour s'affranchir dans un premier temps des difficultés de mise en œuvre liées à l'environnement nucléaire et pour mettre en place et valider des méthodes de mesures, il est particulièrement pratique de travailler sur un matériau simulant du combustible, avec des propriétés connues et reportées dans la littérature.

III-1.1. Choix du matériau

Dans un travail amont de cette thèse (post-doctorat de N. Leroux [112]), il fallait donc trouver un matériau céramique aux propriétés similaires à celles de l' UO_2 :

- Taille de grains : autour de 10 μm de diamètre [3].
- Porosité : 5% pour l' UO_2 vierge et environ 10% pour l'irradié [3].
- Structure cristalline : groupe d'espace $\text{Fm}\bar{3}\text{m}$ [3].
- Ténacité : entre 1,5 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{0,5}$ et 2,0 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{0,5}$ pour le combustible vierge, mesurée par *SENB* [13].

D'autres paramètres sont à prendre en compte, tels que la dureté, les coefficients élastiques ou encore la stabilité en température. Une première étude a permis de présélectionner deux matériaux céramiques [113]: la zircone ZrO_2 cubique et la cérine CeO_2 , aux propriétés très proches de celles du combustible vierge (*Tableau III-1*). La cérine est un matériau candidat intéressant, mais elle est particulièrement difficile à densifier et la porosité qui en découle perturbe beaucoup les mesures d'indentation. Finalement, le matériau modèle retenu est la zircone, principalement parce qu'il est possible d'avoir une zircone avec une porosité et une taille de grains moyenne qui correspondent aux exigences. La zircone sélectionnée (fournie par Microcertec, Collegien, France) est appelée *8Y-FSZ*, car elle contient 8% molaire de Y_2O_3 et est complètement stabilisée en phase cubique (*Fully Stabilized Zirconia*).

Tableau III-1 : Comparaison des propriétés du cristal ainsi que des propriétés macroscopiques à 25°C, de l' UO_2 et des deux matériaux modèles candidats : la zircone ZrO_2 cubique *8Y-FSZ* et la cérine CeO_2 [113].

	UO_2	ZrO_2 <i>8Y-FSZ</i>	CeO_2
<i>Propriétés du cristal</i>			
Structure cristallographique	$\text{Fm}\bar{3}\text{m}$	$\text{Fm}\bar{3}\text{m}$	$\text{Fm}\bar{3}\text{m}$
Paramètre de maille	0,547 nm	0,517 nm	0,540 nm
Coefficients d'élasticité	$C_{11} = 396 \text{ GPa}$ $C_{12} = 121 \text{ GPa}$ $C_{44} = 64 \text{ GPa}$ [114]	$C_{11} = 402 \text{ GPa}$ $C_{12} = 95 \text{ GPa}$ $C_{44} = 56 \text{ GPa}$ [115]	$C_{11} = 403 \text{ GPa}$ $C_{12} = 105 \text{ GPa}$ $C_{44} = 60 \text{ GPa}$ [116]
Éléments d'alliage	Aucun	Y_2O_3	aucun
Transformation de phase	Aucune ou peu	Aucune	Aucune
Densité théorique	10,97 $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$	6,1 $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$	7,2 $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$
Stabilité en température	Stable jusqu'à fusion	Stable jusqu'à 1800°C	Stable jusqu'à fusion
<i>Données des fournisseurs</i>			
Porosité	$\approx 5\%$	$\approx 7\%$	$> 10\%$
Taille de grains moyenne	$\approx 12 \mu\text{m}$	$\approx 10 \mu\text{m}$	?
Ténacité	$\approx 1,0 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{0,5}$	$\approx 3,5 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{0,5}$	$\approx 1,4 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{0,5}$
Contrainte à rupture	$\approx 100 - 150 \text{ MPa}$	$\approx 180 \text{ MPa}$	?
Disponibilité		Bonne	Mauvaise

A température ambiante, la zircone non alliée cristallise dans une phase monoclinique. En augmentant la température, le réseau se relaxe et change de système cristallin, passant progressivement en système quadratique au-dessus de 1170°C, puis cubique à partir de 2370°C (Figure III-1). La zircone peut cependant être stabilisée dans l'une de ces phases grâce à des dopants. L'un des plus couramment utilisé est le dioxyde d'yttrium Y_2O_3 , qui permet l'insertion d'ions Y^{3+} dans le réseau cationique, et donc la création de lacunes anioniques qui relaxent la structure [117]. La diffusion ionique est particulièrement lente dans la zircone en dessous de 1400°C, c'est pour cela qu'un diagramme de phase métastable est souvent utilisé en complément (Figure III-1).

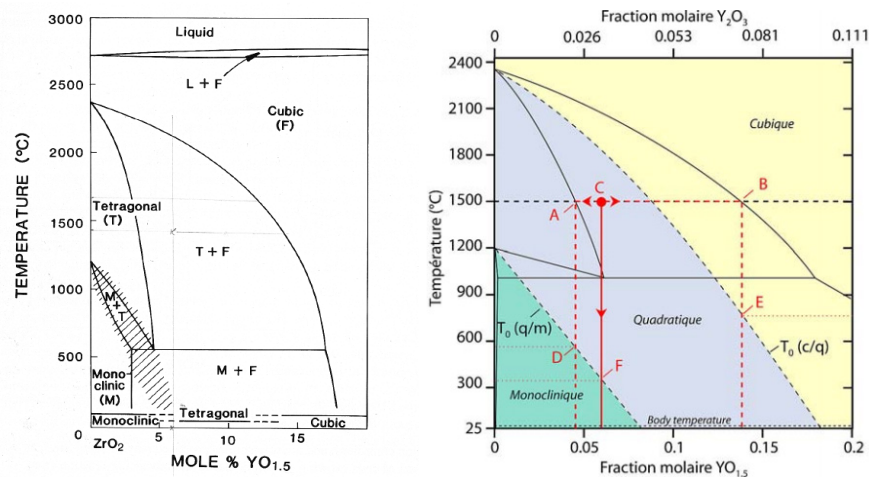


Figure III-1 : Diagramme de phase zircone-yttrine [118]. Diagramme de phases métastables zircone-yttrine [117].

Quand la zircone est stabilisée dans le système cubique, on la note *FSZ* (*Fully Stabilized Zirconia*). Elle est obtenue pour des fortes teneurs en éléments stabilisants, par exemple à partir de 8% molaire en Y_2O_3 . Même si thermodynamiquement il faudrait 20% pour la stabiliser complètement, en pratique la transformation est si lente qu'elle peut être considérée comme stable avec 8% [117].

La *FSZ* n'est pas souvent utilisée pour ses propriétés mécaniques, les zircons partiellement stabilisés étant plus intéressantes, notamment grâce aux phénomènes de transformation de phases. Par contre, elle est couramment utilisée pour la présence de lacunes d'oxygène qui entraînent une forte conductivité ionique, et donc en fait un bon candidat pour des applications de piles à combustible ou de capteur d'oxygène [119].

La maille cristalline de la zircone *8Y-FSZ* est cubique à face centrée : le cristal associé affiche donc des propriétés présentant une anisotropie cubique. Les trois principales familles de plans sont les $\{100\}$, $\{110\}$ et $\{111\}$, et les directions normales de chacun de ces plans sont notées respectivement $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ et $\langle 111 \rangle$ (Figure III-2). L'élasticité du cristal de zircone présente une forte anisotropie, avec un facteur d'anisotropie $A = (C_{11} - C_{12}) / C_{44}$ de 0,36 [120]. Le module de Young selon la direction $\langle 100 \rangle$ d'un monocristal est de 360 GPa, contre 170 GPa pour la direction $\langle 111 \rangle$. Le module moyen polycristallin constitué d'un ensemble de cristaux aléatoirement orientés peut être encadré par deux modules : les bornes de Voigt et Reuss [113][121]. La valeur qui découle de ces modules anisotropes est comprise entre 217 GPa et 244 GPa, alors que le module de Young isotrope mesuré macroscopiquement oscille entre 200 GPa et 220 GPa selon les données de la littérature [122][123].

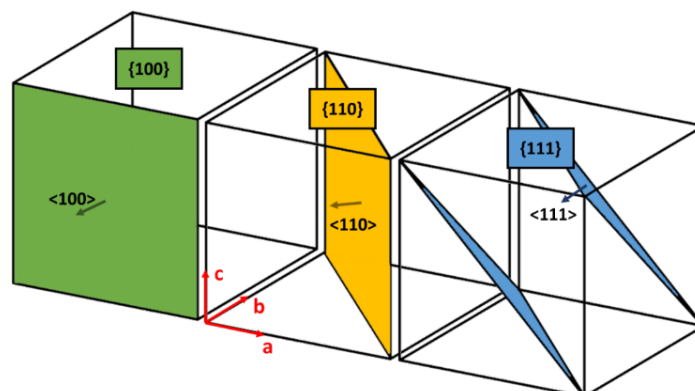


Figure III-2 : Schéma de la maille cristalline ZrO_2 cubique et de ses principales familles de plans cristallographiques $\{100\}$, $\{110\}$ et $\{111\}$.

III-1.2. Données bibliographiques sur la zircone cubique

La zircone cubique complètement stabilisée, de 8Y à 20Y-FSZ, est un matériau bien connu et ses propriétés mécaniques ont déjà été étudiées à l'échelle macroscopique. De nombreuses données sont disponibles dans la littérature, que ce soit sur la contrainte à rupture et la ténacité macroscopique d'échantillons polycristallins, ou bien sur la ténacité macroscopique d'échantillons monocristallins. Un récapitulatif des propriétés en rupture trouvées dans la littérature est exposé dans les *Tableau III-2* et *Tableau III-3*.

III-1.2.1. Dureté

Dans la littérature, les essais d'indentation sont généralement réalisés à des charges de quelques newtons. La dureté Vickers mesurée sur la zircone cubique polycristalline se situe entre 13 GPa et 15 GPa [119][124][125]. Une étude réalisée sur l'indentation Berkovich à très faible charge, entre 1 mN et 12,5 mN, donne une dureté bien plus élevée, autour de 18 GPa. La dureté semble d'ailleurs peu dépendante de la taille de grains, que ce soit pour des faibles charges [126], ou des charges de l'ordre de quelques newtons [125]. Pour la dureté Vickers mesurée sur des monocristaux, elle est dans la même gamme de valeur, entre 17,5 GPa et 15 GPa pour des charges allant de 0,5 N à 2 N et est peu ou pas dépendante de l'orientation du cristal [127][128].

III-1.2.2. Ténacité

Les valeurs de ténacité de la zircone cubique polycristalline sont globalement en bon accord d'une publication à une autre, qu'elles soient mesurées par *VIF* [124][125][129], ou bien par des essais plus conventionnels tels que l'essai *SENB* [130]. Elles varient entre 1,2 MPa.m^{0,5} et 2,0 MPa.m^{0,5}, pour une moyenne autour de 1,5 MPa.m^{0,5}. La variation est probablement due aux différences microstructurales entre les échantillons : porosités, tailles de grains. Le mode de rupture majoritairement observé est transgranulaire [119][131][130]. Il faut cependant noter que la ténacité de la littérature est considérablement plus faible que celle donnée par le fournisseur, de 3,5 MPa.m^{0,5} (*Tableau III-1*).

La valeur moyenne sur le matériau polycristallin est proche des ténacités mesurées sur le matériau monocristallin [128]. Sur des monocristaux orientés cristallographiquement, la méthode de mesure la plus répandue dans la littérature est la *VIF* [127][132][133] en utilisant la formule d'Anstis [57]. La ténacité des plans {100}, entre 1,3 MPa.m^{0,5} et 1,9 MPa.m^{0,5}, semble plus élevée que celle des plans {110}, située entre 0,84 MPa.m^{0,5} et 1,10 MPa.m^{0,5}. Cette méthode est certes la plus pratique pour solliciter des plans cristallins, mais présente des limites pour la détermination de l'anisotropie en ténacité. Comme l'explique Stanescu *et al.* [132], l'analyse initiale d'Anstis est basée sur l'hypothèse d'un matériau élastique et isotrope. Ainsi, quand l'orientation du cristal varie, ses propriétés anisotropes peuvent affecter la mesure de ténacité. Dans la même étude, Stanescu *et al.* [132] mettent en avant une ténacité apparente plus grande pour les plans {111} que pour les plans {110}, alors que pour une structure fluorite, ce sont les plans {111} qui devraient être les plans préférentiels de clivage. Uniquement une seule publication référence la ténacité de plans cristallins mesurée par une autre méthode que l'indentation [128]. Les auteurs ont réalisé des essais macroscopiques de flexion *SENB* sur des monocristaux orientés : la ténacité mesurée des plans {100} est de 1,9 MPa.m^{0,5}, alors qu'elle est de 1,48 MPa.m^{0,5} pour les plans {110}. Seulement deux éprouvettes *SENB* ont été testées pour chaque orientation, avec une troisième éprouvette selon {100} qui a donné une ténacité anormalement élevée de 3,57 MPa.m^{0,5} et a été écartée. Les mêmes auteurs ont comparé les résultats de *SENB* et *VIF* sur des monocristaux orientés [134], cette dernière méthode donnant 1,9 MPa.m^{0,5} et 1,1 MPa.m^{0,5} pour respectivement {100} et {110}. Ils expliquent que pour les essais Vickers, le système de fissuration diffère selon l'orientation testée. Pour l'orientation {110}, les fissures sont radiales et perpendiculaires aux plans {110}, c'est-à-dire le long des directions <110>, tandis que pour les plans {100}, les fissures ne suivent pas une direction <100> et sont déviées vers un plan {110} sous l'empreinte. Ainsi, selon les auteurs, pour les plans {100}, la ténacité est surestimée, et la bonne cohérence des résultats entre *SENB* et *VIF* « doit être accidentelle ».

Tableau III-2 : Tableau récapitulatif des valeurs de ténacité de la zircone FSZ trouvées dans la littérature. DCB signifie Double Cantilever Beam, SENB signifie Single Edge Notched Beam et VIF Vickers Indentation Fracture method.

Source	Composition (%mol. Y ₂ O ₃)	Taux de porosité	Taille de grain moyenne	Type	Plan testé	Technique	K _{IC} (MPa.m ^{0,5})
[128]	9,4%	-	-	Monocristal	{100}	SENB	1,9
						VIF	1,9
				Monocristal	{110}	SENB	1,48
						VIF	1,1
[135]	20%	-	-	Monocristal	{?}	SENB	2,4
[136]	20%	-	-	Monocristal	{?}	DCB / VIF	1,7
[137]	10%	-	-	Monocristal	{110}	DCB	1,5
[127]	9,5%	-	-	Monocristal	{100}	VIF	1,3
				Monocristal	{110}	VIF	0,84
[132]	9,4%	-	-	Monocristal	{110}	VIF	1,10
				Monocristal	{111}	VIF	1,48
[133]	9%	-	-	Monocristal	{100}	VIF	1,8
[119]	8%	?	10 µm	Polycristal	-	VIF	1,5
[131]	8%	3,5%	10 µm	Polycristal	-	DCB	1,2 - 1,5
[125]	8%	0-5%	1 µm et plus	Polycristal	-	VIF	1,3 - 1,5
[124]	10%	1,6%	3,5 µm	Polycristal	-	VIF	1,5
[129]	8%	5%	5 µm	Polycristal	-	VIF	1,7
[138]	8%	5 %	5 µm	Polycristal	-	SENB	2
[130]	8%	3 %	11,2 µm	Polycristal	-	SENB	1,54

III-1.2.3. Contrainte à rupture

Différents auteurs reportent des contraintes à rupture σ_R mesurées principalement par flexion. Cette grandeur dépend particulièrement du nombre et de la taille des défauts présents. Ainsi, elle varie avec la taille de l'éprouvette, mais aussi avec les caractéristiques microstructurales du matériau. Pour une zircone avec plus de 5% de porosité, la contrainte à rupture se situe autour de 180 MPa [123]. Pour un taux plus faible de porosité, entre 1% et 4%, σ_R est entre 200 MPa et 350 MPa [122][130][139]. Enfin pour un monocristal sans porosité (pas d'information sur l'orientation), la contrainte mesurée vaut près de 500 MPa pour des petites éprouvettes de flexion trois points de dimensions 12 x 2,2 x 3,3 mm³ [136].

Tableau III-3 : Tableau récapitulatif des contraintes à rupture de la zircone FSZ trouvées dans la littérature. DCB signifie Double Cantilever Beam, SENB signifie Single Edge Notched Beam et VIF Vickers Indentation Fracture method.

Source	Composition (Y ₂ O ₃)	Porosité	Taille de grain moyenne	Cristal Plan testé		Technique	Contrainte à rupture (MPa)
[136]	8%	-	-	Monocristal	{?}	Flexion 3 pts	520
[122]	8%	3%	5,0 µm	Polycristal	-	Traction et flexion 4 pts	200 et 350
[139]	8%	1 – 4%	?	Polycristal	-	Flexion 3 pts	250
[123]	6,5%	5 – 7%	50 µm	Polycristal	-	Flexion 3 pts	180
[130]	8%	3%	11,2 µm	Polycristal	-	Flexion 3 pts	211

III-1.2.4. Bilan

Les données de la littérature sur les propriétés à la rupture de la 8Y-FSZ sont regroupées et présentées sous forme de fourchettes de valeurs (Tableau III-4). Il faut cependant considérer ce tableau avec précautions, car les essais sont réalisés par des laboratoires différents, des méthodes différentes, sur des matériaux dont les caractéristiques peuvent varier. Finalement, selon les données de la littérature, la ténacité de la zircone mono- et poly-cristalline se situe dans la même gamme de valeurs, en moyenne autour de 1,5 MPa.m^{0,5}. Pour la ténacité des plans cristallographiques, le plan {110} semble légèrement moins tenace que le plan {100}, mais peu de

données fiables sont disponibles et il est donc difficile de conclure sur un ordre de ténacité entre les plans {100}. Cependant, la méthode *VIF* ne semble pas parfaitement adaptée à ce type de mesure, et très peu d'essais *SENB* ont été réalisés. Ainsi, il faudrait plus de données pour vraiment conclure sur l'ordre de résistance des différents plans cristallins.

Tableau III-4 : Synthèse des propriétés à la rupture de la zircone 8Y-FSZ issues de la littérature.

Sollicitation sur :	Ténacité (MPa.m ^{0,5})		Contrainte à rupture (MPa)
	<i>SENB</i>	Vickers	
Plan {100}	1,9	1,3 – 1,9	-
Plan {110}	1,48	0,84 – 1,1	-
Plan {111}	-	1,48	-
Polycristaux	1,54 – 2,0	1,2 – 1,7	180 - 350

III-1.3. Résultats d'essais d'indentation [112]

Un projet a précédemment été mené dans le cadre du post-doctorat de Nathalie Leroux au laboratoire MATEIS (INSA-Lyon), sur l'indentation de matériaux modèles de combustible [112]. Il avait pour but d'étudier les propriétés locales à la rupture par la méthode d'indentation, ainsi que l'influence de la microstructure sur les mesures. Une brève description des conclusions de ce travail est donnée dans cette partie.

III-1.3.1. Matériau, préparation et méthode

Le matériau utilisé était une zircone 8Y-FSZ, complètement stabilisée en phase cubique grâce à une teneur de 8% molaire en Y₂O₃ (fourni par Microcertec, Collegien, France). La distribution de la taille de grains a été déterminée par l'analyse de nombreuses cartographies *EBSD*. La surface des grains est mesurée par le logiciel HKL Channel5 (Oxford Instruments, Abingdon-on-Thames, Royaume-Uni), qui permet de calculer leur diamètre équivalent, qui vaut, en moyenne, $6,5 \pm 3,1 \mu\text{m}$. Le taux de porosité, calculé par imagerie MEB avec un capteur d'électrons rétrodiffusés est de $2,1 \pm 0,5\%$.

L'échantillon était une pastille frittée de 8 mm de diamètre et de 2 mm d'épaisseur. La surface a été polie mécaniquement avec des suspensions diamantées jusqu'à une solution contenant des particules de 1 μm de diamètre. Une étape de finition a été réalisée par polissage vibratoire avec une solution de silice colloïdale de particules de taille de 0,03 μm .

Les essais d'indentation ont été réalisés à l'aide d'un nano-indenteur G200 (Keysight Technologies, Santa Rosa, USA) à visée optique. La sollicitation a été faite en mode *CSM* (*Continuous Stiffness Measurement*) à déformation imposée, avec une vitesse de 0,05 s⁻¹. De nombreux tests ont été réalisés sur une large gamme de charges : de 5 mN jusqu'à 10 N. Trois types de pointes ont été testés : Berkovich, Vickers et *Cube Corner*. La pointe finalement sélectionnée a été la pointe Berkovich car c'est la pointe la plus adaptée aux faibles charges. De plus, la pointe Vickers générait des fissures trop chaotiques, et la pointe *Cube Corner*, même si elle permet un amorçage de fissures à plus faible charge, créait beaucoup de bourrelets d'indentation (*Figure III-3*).

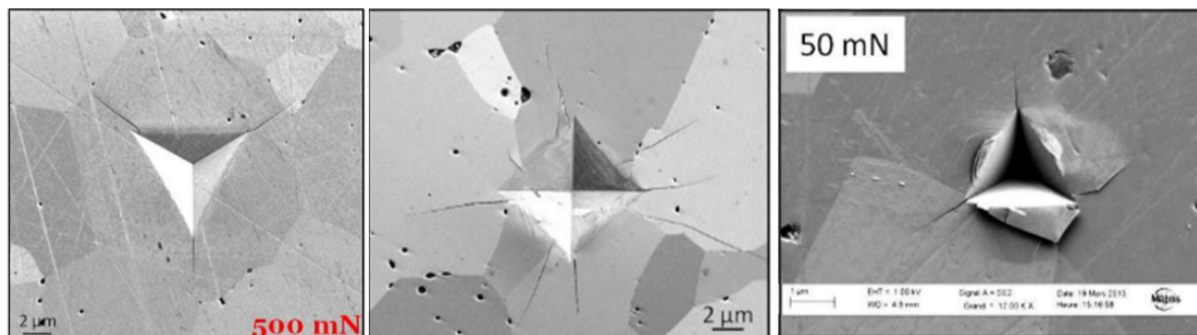


Figure III-3 : Images MEB d'empreintes générées par trois types de pointes différentes ; de gauche à droite : Berkovich, Vickers et *Cube Corner*, à respectivement 500 mN, 660 mN et 50 mN [112].

III-1.3.2. Dureté

La dureté de la zircone 8Y-FSZ a été déterminée par les mesures d'empreintes résiduelles au MEB. La méthode d'Oliver & Pharr, qui est basée sur l'analyse de la courbe d'indentation, avait en effet été identifiée comme surestimant la dureté H pour les faibles charges : à cause de la forte rigidité de la zircone, la déformation élastique de la pointe en diamant est non-négligeable, et la vraie aire de contact est sous-estimée [140]. Sur une large gamme de charges (Figure III-4), la dureté est décroissante avec la force appliquée, allant de 18 GPa pour une charge de 20 mN, jusqu'à 14,5 GPa pour 10 N.

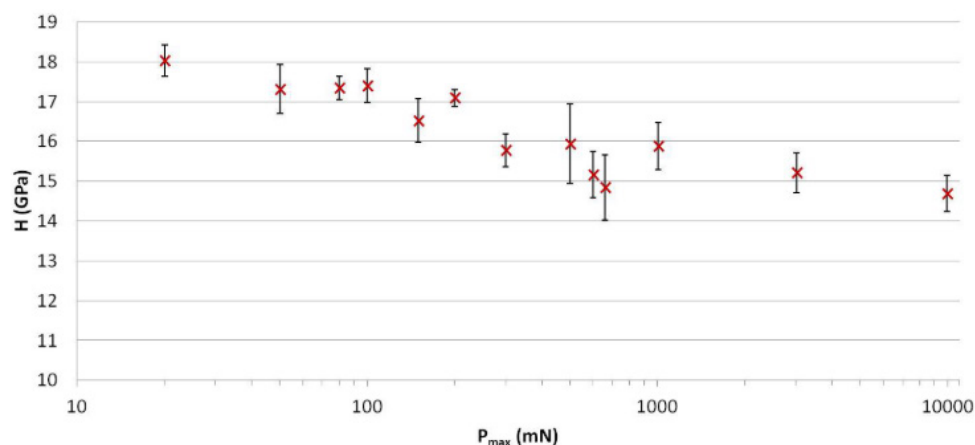


Figure III-4 : Mesures de dureté H en fonction de la charge maximale appliquée sur zircone 8Y-FSZ [112].

III-1.3.3. Fissuration

La fissuration générée par indentation dans la zircone 8Y-FSZ a été étudiée dans le but de remonter à la valeur de ténacité. Pour chaque charge appliquée, l'empreinte et les fissures ont été observées puis mesurées au MEB.

Tout d'abord, le seuil de fissuration a été déterminé : à petites charges, aucune fissure ne se forme, ou en tout cas n'est visible en surface. A partir de 300 mN, il y a au moins une fissure dans l'un des coins de l'empreinte. Entre 600 mN et 1000 mN, une fissure est formée dans chaque coin de l'empreinte. Au-delà, il y a de nombreuses fissures parasites : elles se forment en dehors des axes donnés par les arêtes de la pointe. La charge la plus adaptée à la mesure de ténacité se situe donc entre 600 mN et 1000 mN, mais même pour cette gamme optimisée de charges, il se forme des décohésions entre les grains ou bien des fissures dans des directions qui semblent aléatoires.

Les ténacités mesurées se situent entre $1,5 \text{ MPa.m}^{0.5}$ et $3 \text{ MPa.m}^{0.5}$ (Figure III-5), les formules utilisées étant celles proposées par Cuadrado *et al.* [63]. Les formules et les valeurs de K_{Ic} qui en découlent dépendent de l'hypothèse sur le mode de fissuration autour de l'empreinte (partie II-2.3). Il avait été conclu que les valeurs de ténacité avec l'hypothèse « Half-Penny » étaient plus proches de celles données par le fournisseur (Tableau III-2), et que donc cette hypothèse était probablement la plus adaptée.

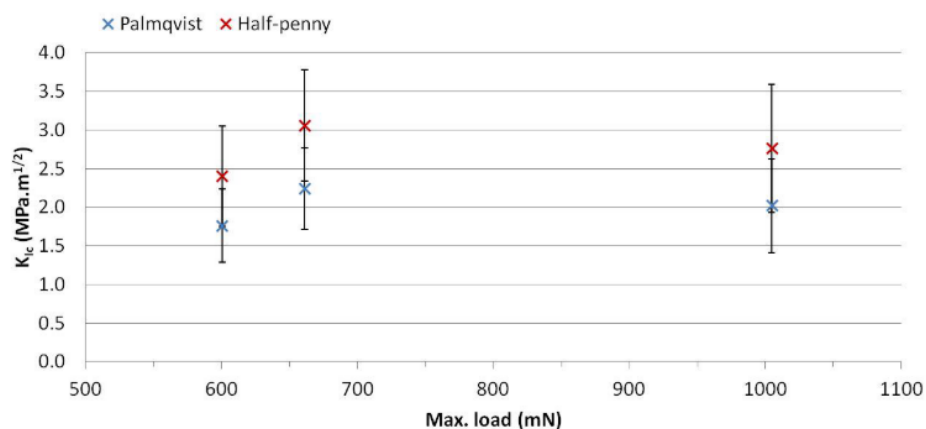


Figure III-5 : Evolution de la ténacité avec la charge maximale appliquée lors des essais d'indentation avec une pointe Berkovich sur zircone 8Y-FSZ. Les valeurs diffèrent selon l'hypothèse sur la configuration des fissures utilisée et la formule qui en découle [112].

Pour vérifier l'hypothèse sur le mode de fissuration, un essai de tomographie au MEB/*FIB* a été réalisé sur une empreinte Berkovich (*Figure III-6*). Cette analyse met en avant le caractère complexe de la fissuration qui se développe sous la surface. En effet, une fissure sur trois est de type « *Half-Penny* », tandis que les deux autres sont plutôt intermédiaires aux deux modes « *Half-Penny* » et « *Palmqvist* ». De plus, des fissures latérales de tailles importantes sont présentes, invisibles depuis la surface.

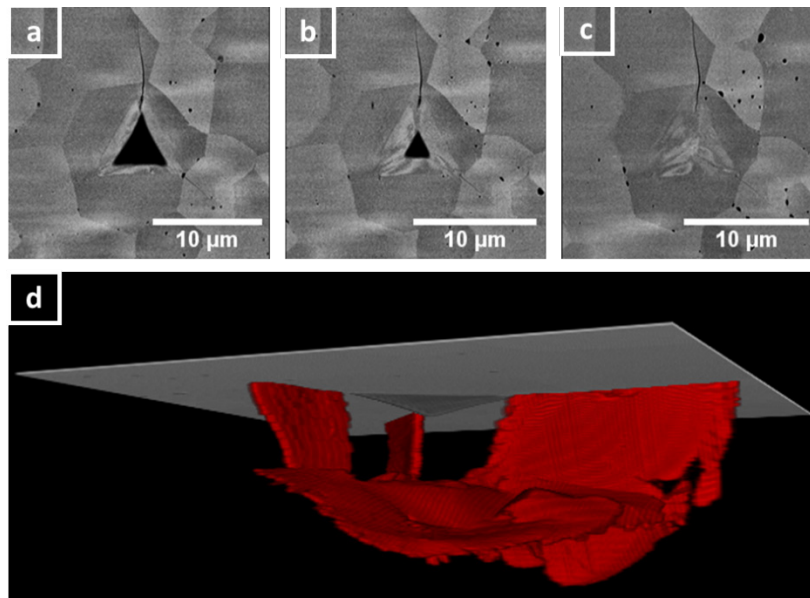


Figure III-6 : Images de reconstruction 3D issues de tomographie *FIB* sous une empreinte Berkovich réalisée à 600 mN. (a) (b) (c) : Plans de coupe de l'empreinte vu par-dessus, de plus en plus profond, montrant la zone plastifiée sous l'indent et les fissures développées sous la surface. (d) Reconstruction 3D du système de fissuration sous la surface, mettant en avant une fissure du type « *Half-Penny* », et les deux autres du type « *Palmqvist* », avec des fissures latérales [112].

Pour quantifier l'influence de la cristallographie sur la fissuration, des cartographies d'orientation *EBS*D ont été réalisées autour des empreintes Berkovich. Sur ces essais, il a été mis en évidence que les fissures se forment le long des directions de contraintes maximales, c'est-à-dire les directions qui correspondent aux arrêtes de la pointe pyramidale, indépendamment de la cristallographie des grains sollicités. Une des raisons envisagées est que sur cet échantillon, le seuil de fissuration, autour de 300 mN, est trop élevé pour que l'essai ne sollicite qu'un seul grain.

Des essais à plus faibles charges ont donc été réalisés et couplés à des mesures *EBS*D. Les empreintes correspondantes sont incluses dans un seul grain. Cependant, sur ces essais, il ne se forme pas systématiquement une fissure dans chaque coin, et sur les nombreux essais engagés, très peu sont exploitables. Finalement, il est compliqué de faire un lien entre orientation cristallographique et fissuration autour des empreintes sur ce matériau polycristallin.

III-1.3.4. Bilan

Les valeurs de dureté mesurées sur l'échantillon de zircone polycristalline sont cohérentes avec la littérature, et ce pour toute la large gamme de charges appliquées : *H* varie de 18 GPa à 14,5 GPa pour des charges allant de 20 mN jusqu'à 10 N.

Pour les valeurs de ténacité, elles sont plus élevées que dans la littérature, que ce soit pour une hypothèse « *Half-Penny* » ou une hypothèse « *Palmqvist* », donnant respectivement 2,7 MPa.m^{0,5} et 2,0 MPa.m^{0,5} contre 1,2 - 2,0 MPa.m^{0,5} dans la littérature. La tomographie *FIB* a montré qu'à 600 mN, le mode de fissuration est mixte : une fissure est plutôt en « *Half-Penny* », les deux autres sont intermédiaires.

Il a été aussi mis en évidence une influence probable de la microstructure du matériau, et donc des joints de grains, de l'orientation cristalline ou encore de la porosité, sans toutefois pouvoir l'estimer clairement.

III-2. Indentation

Afin d'estimer l'influence de la microstructure sur la ténacité mesurée par indentation, un échantillon de zircon cubique monocristallin a été étudié. Avec celui-ci, les mesures sont affranchies de l'effet des joints de grains et des porosités. De plus, il est plus aisé de l'orienter cristallographiquement et permet donc de mieux maîtriser les directions cristallines sollicitées. Afin d'assurer la comparaison des résultats, le matériau polycristallin est de nouveau testé dans les mêmes conditions que le monocristal.

III-2.1. Echantillons et méthodes

III-2.1.1. Matériau et préparation

▪ Le matériau polycristallin

Le matériau et la préparation de surface sont les mêmes que précédemment (*partie III-1.3.1*). C'est une zircon 8Y-FSZ, stabilisée en phase cubique par 8% molaire d' Y_2O_3 (Microcertec, Collegien, France). La taille de grains moyenne est de $6,5 \pm 3,1 \mu m$ et le taux de porosité est de $2,1 \pm 0,5\%$.

L'échantillon, une pastille frittée, a été poli mécaniquement avec des suspensions diamantées jusqu'à une solution contenant des particules de $1 \mu m$ de diamètre. Une étape de finition a été réalisée par polissage vibratoire avec une solution de silice colloïdale de particules de taille de $0,03 \mu m$. Cette fois, la dernière étape de polissage vibratoire a été plus longue (une nuit ici, contre 2h auparavant), car cela améliorait la qualité de la surface préparée.

▪ Le matériau monocristallin

L'échantillon monocristallin utilisé, sans porosité, est constitué de zircon cubique stabilisée avec 8% molaire d' Y_2O_3 (fournit par MSE Supplies, Tucson, USA). L'échantillon est de forme parallélépipédique, de côté 1 cm et de hauteur 1 mm. Le cristal est orienté et son axe de croissance, correspondant à sa hauteur, est une direction de type $\langle 100 \rangle$, avec sa surface qui est un plan de type $\{100\}$. Enfin, les côtés de l'échantillon correspondent à des directions bissectrices de l'angle entre $\langle 100 \rangle$ et $\langle 110 \rangle$ (*Figure III-7*). Toutes ces orientations sont des données fournisseurs qui ont été confirmées par des mesures EBSD.

Le protocole de la première préparation de surface, réalisée par le fournisseur, n'est pas connu, mais l'échantillon a été ensuite préparé par polissage vibratoire en suivant le même protocole que l'étape correspondante pour le matériau polycristallin.

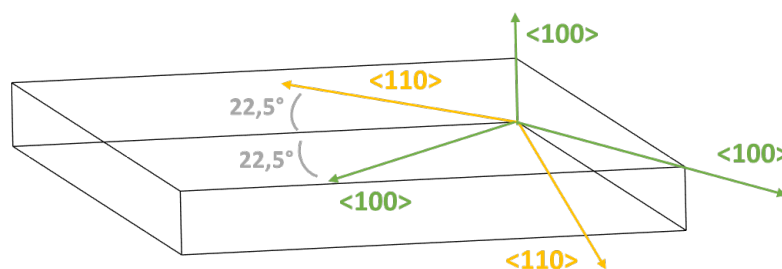


Figure III-7 : Schéma de l'échantillon monocristallin de zircon cubique, avec les orientations cristallographiques associées.

III-2.1.2. Validation

Afin d'assurer la cohérence des résultats avec l'étude précédente (*partie III-1.3*), une première étape de validation de la méthode a été réalisée. Elle consistait à faire des essais identiques à ceux produits par N. Leroux, avec le même matériel d'indentation sur le même matériau polycristallin, mais préparé et testé par un autre opérateur.

Les mesures de dureté ont été effectuées de la même manière que l'étude précédente (*partie III-1.3.2*), c'est-à-dire par mesure au MEB de l'aire de l'empreinte. Les duretés sont comparables sur la gamme de charges allant de 400 mN à 650 mN, et y sont très similaires, autour de 15,5 GPa (*Figure III-8*). Cela montre qu'il y a peu d'effets opérateurs introduits sur la détermination de la dureté, que ce soit par la mesure des dimensions au MEB, ou bien par la préparation de l'échantillon.

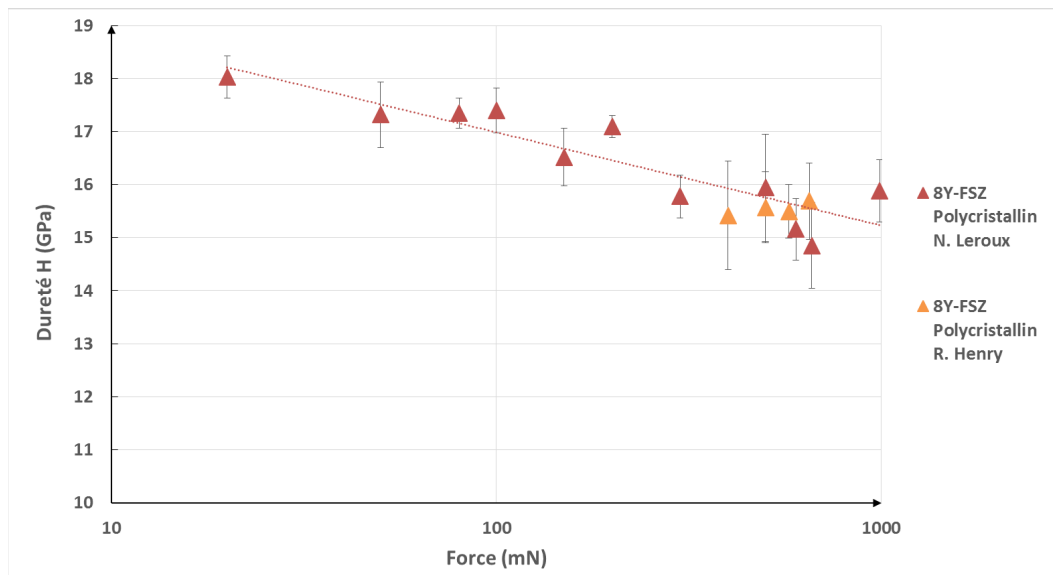


Figure III-8 : Dureté déterminée par mesures d'aire des empreintes Berkovich au MEB, en fonction de la charge appliquée et de l'opérateur.

La comparaison des longueurs de fissures en fonction des charges appliquées montre cependant une différence non négligeable (Figure III-9). Même si les écarts entre ces longueurs de fissures ne sont que de l'ordre de $2\ \mu\text{m}$, elles peuvent entraîner une modification de la ténacité mesurée de l'ordre de $1\ \text{MPa}\cdot\text{m}^{0.5}$, soit jusqu'à 33% d'écart relatif. La gamme de force pour laquelle les fissures sont bien formées autour de l'empreinte est également différente. Dans cette étude, elle a été estimée entre 400 mN et 650 mN, contre 600 mN et 1 N auparavant.

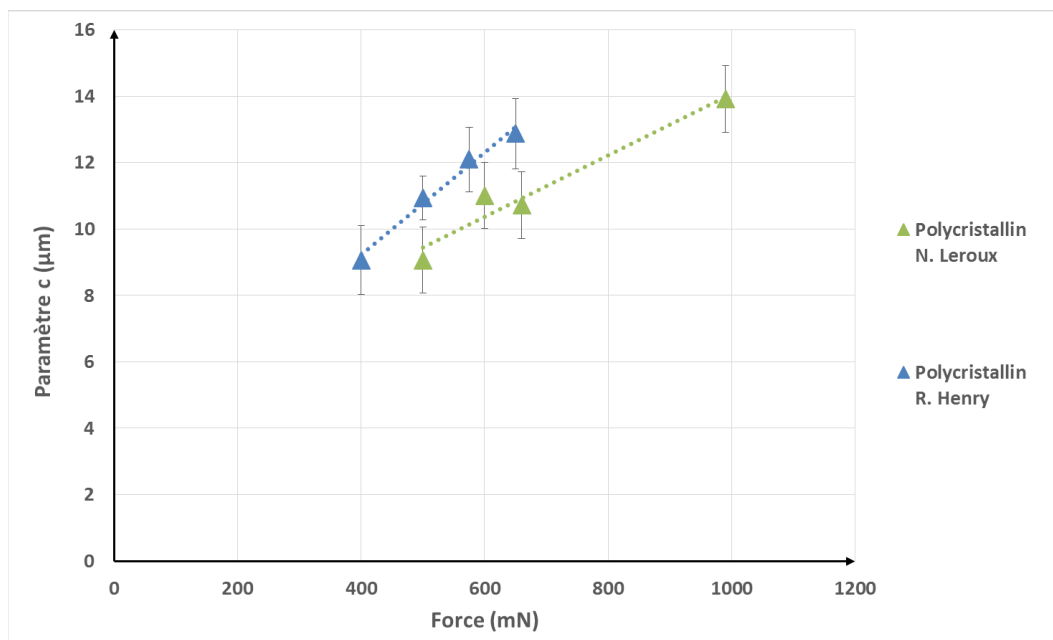


Figure III-9 : Longueur du paramètre de fissuration c (longueur de la fissure l + diagonale de l'empreinte a) mesurée au MEB autour d'empreintes Berkovich, en fonction de la charge appliquée et de l'opérateur.

Cet écart vient peut-être de l'étape de finition par polissage vibratoire, plus longue dans la présente étude. Cela génère une différence de qualité de surface visible au MEB (Figure III-10), l'échantillon présentant alors moins de rayures. Cela pourrait jouer sur la propagation des fissures en surface, ou bien sur la visualisation des fissures au MEB. Pour pouvoir répondre à ces questions, il faut cependant être capable d'estimer les différentes incertitudes de ces mesures.

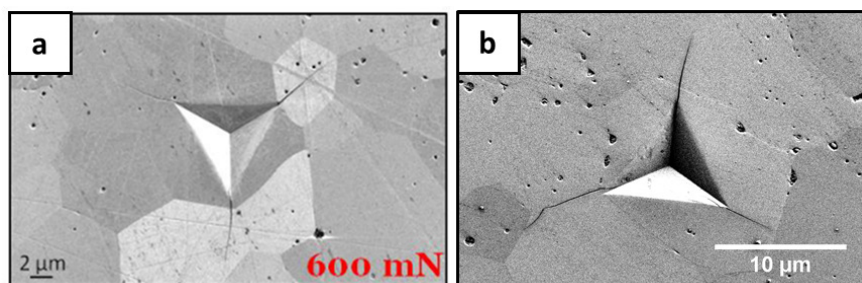


Figure III-10 : Images MEB de deux échantillons différents issus du même matériau. (a) Le protocole de préparation de surface utilise 2h de polissage vibratoire [112]. (b) le protocole utilise une nuit de polissage vibratoire.

III-2.1.3. Incertitudes

L'incertitude sur les mesures d'indentation (dureté, longueur de fissures, ténacité) peut provenir de deux sources : la mesure des dimensions et la mesure de force, liée respectivement au MEB et au nano-indenteur.

Pour évaluer la justesse des mesures du MEB, une grille étalon est utilisée. L'écart entre chaque carreau est de $10 \pm 0,02 \mu\text{m}$, grandeur mesurée précisément par diffraction des rayons X. La mesure au MEB de la grille donne $10,07 \mu\text{m}$, avec un écart-type de $0,05 \mu\text{m}$, pour 24 mesures effectuées ; soit un écart à la justesse de 0,7%.

La résolution des nano-indenteurs est en général excellente, d'environ $0,05 \mu\text{N}$ en force et $0,1 \text{ nm}$ en déplacement, selon les données des constructeurs (en pratique, de si faibles charges et/ou déplacements ne sont pas appliqués car dans un tel cas, l'état de surface de l'échantillon, l'état de propreté de la pointe ou encore d'éventuelles vibrations influenceraient beaucoup la mesure). L'erreur sur la mesure de force ou de déplacement est donc parfaitement négligeable ici, puisque les essais présentent, à minima, une force de 20 mN et un déplacement de 200 nm .

Pour estimer l'incertitude liée à la mesure des longueurs, réalisée à l'aide du logiciel ImageJ, une image MEB d'une empreinte a été étudiée. Sur cette image, le paramètre c_i de chaque coin i , ainsi que les trois diagonales de l'empreinte a_i , ont été mesurés 10 fois chacun. L'écart-type sur chaque paramètre a été calculé et moyenné sur les trois diagonales, donnant un ratio écart-type sur valeur moyenne de respectivement 1,6% et 1,3% pour a et c .

Pour estimer l'incertitude liée à l'opérateur, 50 images MEB d'empreintes réalisées auparavant ont été traitées de nouveau en mesurant à chaque fois le paramètre c_i dans chaque coin de l'empreinte. La moyenne c de ces trois paramètres c_i a été comparée, pour chaque image, au paramètre c mesuré auparavant par N. Leroux. Les anciennes mesures donnaient $10,73 \pm 0,93 \mu\text{m}$, contre $10,54 \pm 0,93 \mu\text{m}$ pour les nouvelles, la première grandeur étant la moyenne, la seconde l'écart-type sur les valeurs. L'écart relatif des moyennes est de 1,8%.

Tableau III-5 : Incertitudes relatives sur le paramètre de fissuration c , en fonction de la source de l'incertitude.

Sources d'incertitude	MEB	Nano-indenteur	Mesures avec ImageJ	Opérateur sur la mesure de c
Incertitude relative sur c	0,7%	<i>négligeable</i>	1,3%	1,8%

La différence de résultats entre deux échantillons est estimée en comparant les mesures du paramètre c effectuées à une même charge. Les autres paramètres de mesures restent constants, les équipements de mesure sont les mêmes, le matériau utilisé est le même, seule la préparation de surface finale et l'opérateur varient. Dans un cas elle vaut $9,1 \pm 0,4 \mu\text{m}$, dans l'autre cas elle vaut $10,4 \pm 0,7 \mu\text{m}$, et la différence relative du paramètre c entre les deux cas est de 13%.

L'écart des valeurs lié à la préparation de l'échantillon semble donc nettement plus élevé que les incertitudes de mesures et d'opérateur (Tableau III-5). Afin de garantir une comparaison valable entre les échantillons polycristallins et monocristallins, seuls les essais réalisés dans la présente étude sont utilisés par la suite. L'incertitude n'est plus alors liée qu'à la mesure des dimensions sur les images MEB, la préparation et l'opérateur étant identiques.

III-2.2. Essais Berkovich sur monocristal

III-2.2.1. Montage expérimental

La surface de l'échantillon monocristallin (*Figure III-11*) est orientée dans un plan de type $\{100\}$. Ainsi, des plans de type $\{100\}$ et de type $\{110\}$ sont perpendiculaires à la surface de l'échantillon (*Figure III-2*), les rendant accessibles à une sollicitation mécanique par l'un des coins de la pointe de nano-indentation. Dans cette configuration, il n'y a cependant aucun plan $\{111\}$ perpendiculaire à la surface. Quand un essai est réalisé dans une orientation quelconque, il est noté $\{q\}$. La pointe Berkovich est fixe, mais l'échantillon peut être tourné dans le porte-échantillon. L'angle de rotation, noté α , est mesuré sur l'image de microscopie optique du nano-indentateur.

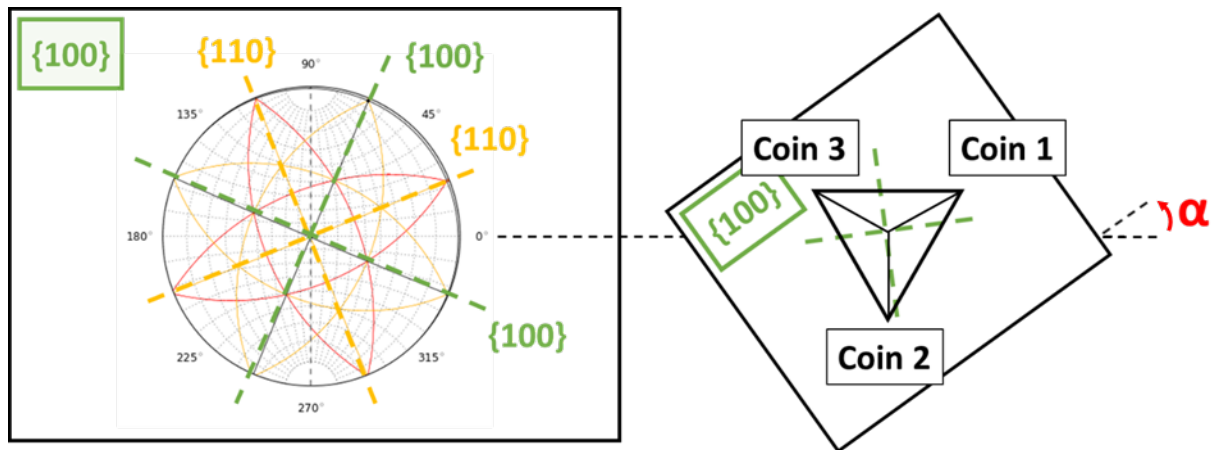


Figure III-11 : Schéma du montage expérimental utilisé pour l'indentation Berkovich d'un monocristal de 8Y-FSZ. (à gauche) : Projection stéréographique associée au cristal. La surface est orientée selon un plan $\{100\}$, et donc des plans de type $\{100\}$ et $\{110\}$ sont perpendiculaires à la surface. (à droite) : Orientation de la pointe Berkovich par rapport à l'échantillon. Celui-ci peut être tourné d'un angle α pour solliciter des directions cristallines choisies.

La surface projetée d'une pointe Berkovich est un triangle équilatéral, les arêtes sont à 120° l'une de l'autre, et sont orientées comme indiqué sur la *Figure III-11*. Chaque coin est numéroté, et la mesure au MEB du paramètre de fissuration c dans un coin est noté c_i , i étant le numéro du coin (*Figure III-12*). Selon l'orientation du cristal, les paramètres c_i peuvent varier considérablement avec i , comme sur l'exemple de la *Figure III-12*.

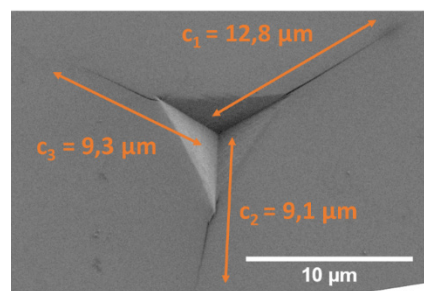


Figure III-12 : Image MEB d'une empreinte Berkovich réalisée sur un monocristal de 8Y-FSZ. A chaque coin de l'empreinte i est associé un paramètre de fissuration c_i .

Pour les plans d'intérêt $\{100\}$ et $\{110\}$, le premier plan disponible pour un angle α positif est le plan de type $\{110\}$, à $22,5^\circ$ par rapport au côté horizontal de l'échantillon. Le coin 1 de la pointe Berkovich est à 30° de l'horizontal, et ainsi, pour le positionner sur le plan $\{110\}$, il faut appliquer un angle α de $7,5^\circ$. Pour chaque nouvelle rotation de 15° , un des angles de la pointe est aligné avec un des plans $\{100\}$ ou $\{110\}$. Enfin, à partir de $\alpha = 90^\circ$, une configuration équivalente à la position initiale est retrouvée.

III-2.2.2. Résultats

■ Dureté

Les duretés mesurées au MEB sur l'échantillon monocristallin sont environ 2 GPa plus faibles que celles mesurées sur l'échantillon polycristallin (*Figure III-13*), et ce pour toutes les charges testées. Un effet de taille d'indentation

est clairement visible, la dureté diminuant avec la charge pour les deux matériaux, allant de 17,3 GPa à 50 mN jusqu'à 15,4 GPa à 400 mN pour le matériau polycristallin, contre 15,9 GPa et jusqu'à 14,4 GPa pour le monocristal. A 400 mN, les essais orientés selon $\{100\}$ ou $\{110\}$ présentent une dureté très similaire aux essais dans une orientation quelconque, autour de 14,5 GPa.

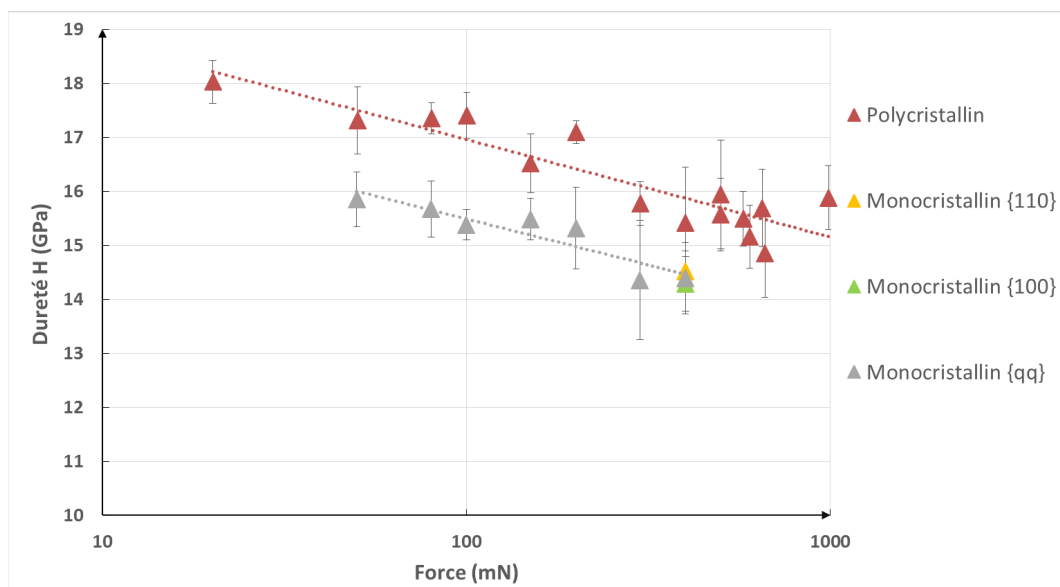


Figure III-13 : Dureté H mesurée par mesures d'aire projetée d'empreintes Berkovich au MEB, sur zircon 8Y-FSZ polycristallin et monocristallin. Les résultats sur le monocristal sont donnés en fonction de l'orientation de la pointe, noté $\{ijk\}$ quand un des coins sollicite un plan de type $\{ijk\}$. L'orientation notée $\{qq\}$ correspond à une orientation cristalline quelconque.

■ Fissuration

L'observation au MEB des empreintes réalisées pour différents angles de rotation α montrent une fissuration préférentielle selon les plans de type $\{110\}$ (Figure III-14). De plus, les fissures dans les plans $\{110\}$ sont toujours parfaitement axées avec l'arrêt de la pointe, alors que pour les autres orientations, elles bifurquent parfois vers une autre direction.

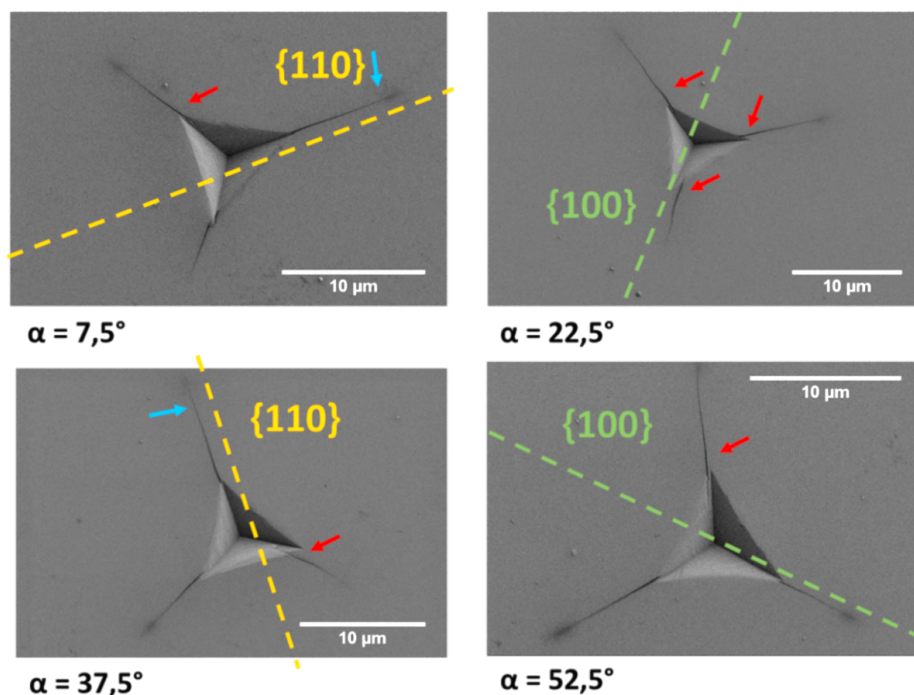


Figure III-14 : Images MEB d'empreintes Berkovich réalisées à 400 mN sur 8Y-FSZ monocristallin. Les essais sont orientés en tournant l'échantillon d'un angle α , de façon à solliciter un plan $\{110\}$ ou $\{100\}$. La projection stéréographique associée au cristal permet de repérer les plans cristalllographiques visés (Figure III-11). Les flèches rouges montrent les fissures ayant déviées de l'axe de l'arête, les flèches bleues pointent une fissure quand elle est particulièrement plus longue que les deux autres.

Des mesures de longueurs de fissures ont été effectuées sur les images MEB, en fonction de l'angle α , allant de $7,5^\circ$ à $127,5^\circ$, avec un pas de 15° (Figure III-15). Pour chaque orientation, trois empreintes ont été réalisées à 400 mN. Chaque paramètre c_i est représenté par une barre. Quand un des coins de l'empreinte est aligné sur un plan cristallographique particulier, la barre est encadrée, en jaune pour un plan $\{110\}$ et en vert pour un plan $\{100\}$. La dispersion des longueurs de fissures est de l'ordre de $0,5 \mu\text{m}$ en moyenne et est représentée par une barre d'erreur.

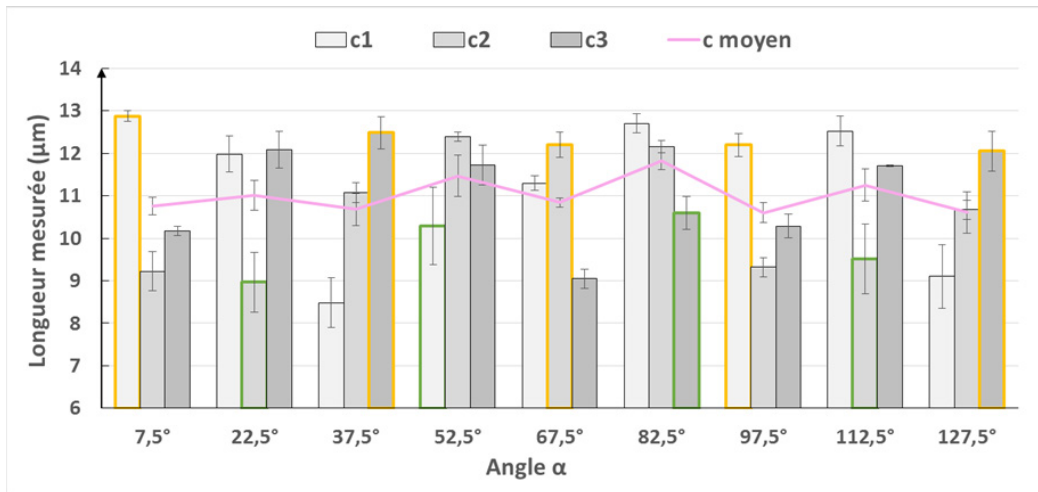


Figure III-15 : Graphique représentant les paramètres c mesurés autour d'empreintes Berkovich réalisées à 400 mN sur un monocristal de 8Y-FSZ. Pour chaque orientation du cristal, et donc pour chaque angle α , allant de $7,5^\circ$ à $127,5^\circ$ avec un pas de 15° , trois essais ont été réalisés. Chaque barre représente c_i , le paramètre c mesuré dans le coin i , la courbe rose représente la moyenne de ces paramètres. Quand la barre est encadrée en jaune ou en vert, le coin associé est aligné selon, respectivement, $\{110\}$ ou $\{100\}$.

Quand un plan $\{110\}$ est sollicité par un coin de la pointe, c'est dans ce coin que la fissure est la plus longue (paramètre c associé noté $c^{\{110\}}$). Inversement, quand un coin sollicite un plan $\{100\}$, c'est dans ce coin que la fissure est la plus courte (paramètre c associé noté $c^{\{100\}}$). Le phénomène est reproductible pour différent α , prouvant qu'un éventuel effet entraîné par le matériel utilisé, tel qu'une pointe asymétrique ou un échantillon incliné, ne peut pas être mis en cause. En moyenne le paramètre $c^{\{110\}}$ est de $12,36 \pm 0,33 \mu\text{m}$, et $c^{\{100\}}$ de $9,84 \pm 0,73 \mu\text{m}$. La moyenne des c_i , représentée une courbe rose, est stable pour toutes les valeurs de α , est vaut en moyenne $11,01 \pm 0,43 \mu\text{m}$.

Si le pas pour la rotation de l'angle α est affiné à 5° entre les positions entrainant la sollicitation de deux plans particuliers (entre $\alpha = 7,5^\circ$ et $\alpha = 22,5^\circ$), c'est le paramètre c_i du coin i le plus proche du plan $\{110\}$ qui est le plus grand, soit c_1 pour $\alpha = 12,5^\circ$ et $\alpha = 17,5^\circ$ (Figure III-16). Pour $\alpha = 22,5^\circ$, le coin 2 coïncide avec $\{100\}$, et donc les deux autres coins sont tous les deux à 15° d'un plan $\{110\}$ et 30° d'un plan $\{100\}$. Dans ce dernier cas, les c_i correspondants sont du même ordre de grandeur.

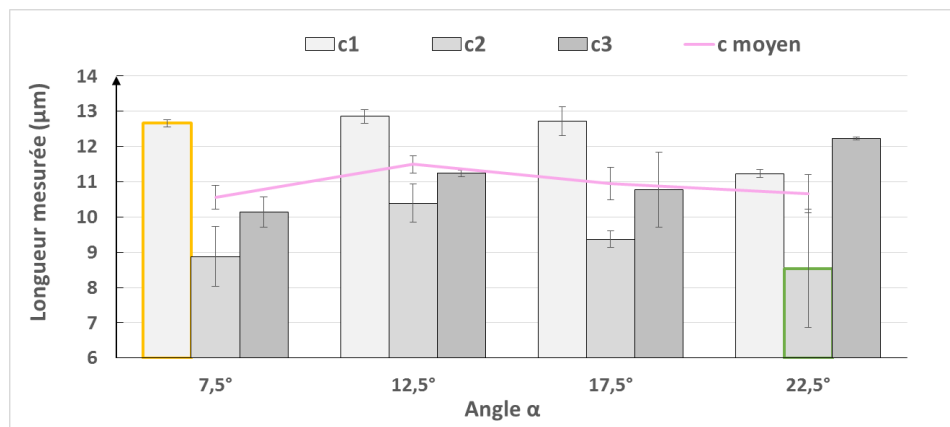


Figure III-16 : Graphique représentant les paramètres c mesurés autour d'empreintes Berkovich réalisées à 400 mN sur un monocristal de 8Y-FSZ. Pour chaque orientation du cristal, et donc pour chaque angle α , allant de $7,5^\circ$ à $22,5^\circ$ avec un pas de 5° , trois essais ont été réalisés. Chaque barre représente c_i , le paramètre c mesuré dans le coin i , la courbe rose représente la moyenne de ces paramètres. Quand la barre est encadrée en jaune ou en vert, le coin associé est aligné selon, respectivement, $\{110\}$ ou $\{100\}$.

L'observation au MEB des empreintes associées met en évidence une légère déviation de la fissure au bout de l'arête la plus proche du plan $\{110\}$ (coin 1 dans *Figure III-17*). Pour $\alpha = 7,5^\circ$, le coin 1 est le long du plan $\{110\}$, et la fissure associée est parfaitement axée avec l'arête. Par contre, pour $\alpha = 12,5^\circ$ et $\alpha = 17,5^\circ$, la fissure associée présente un décalage angulaire avec l'axe de l'arête. La fissure dévie vers le plan $\{110\}$, sans toutefois bifurquer complètement dans le plan cristallin.

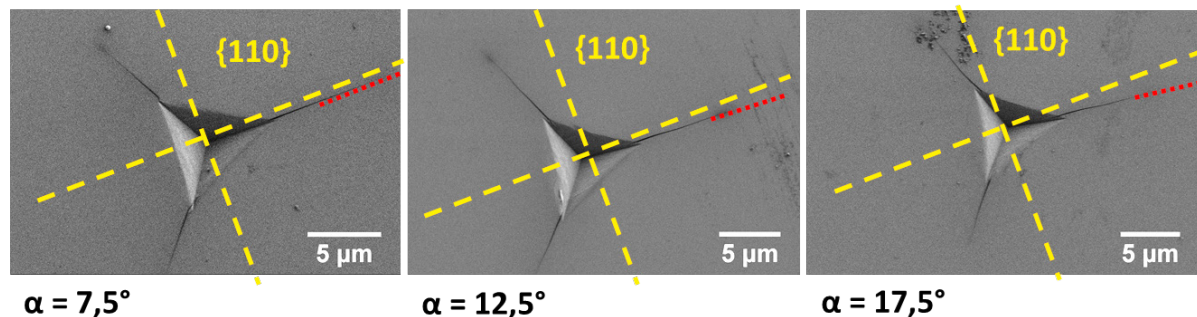


Figure III-17 : Images MEB d'empreintes Berkovich réalisées à 400 mN sur 8Y-FSZ monocristallin. Les essais sont orientés en tournant l'échantillon d'un angle α compris entre $7,5^\circ$ et $17,5^\circ$. La projection stéréographique associée au cristal permet de repérer les plans cristallographiques visés (Figure III-11). Les pointillés rouges repèrent l'axe de la fissure dans le coin 1, qui est l'arête dans le plan $\{110\}$ pour $\alpha = 7,5^\circ$ et la plus proche de $\{110\}$ pour $\alpha = 12,5^\circ$ et $\alpha = 17,5^\circ$.

L'échantillon de zircone monocristallin est transparent à la lumière. Cela permet d'avoir quelques informations sur la forme des fissures sous l'empreinte grâce à un microscope optique (*Figure III-18*). Chaque empreinte orientée selon un plan $\{110\}$ présente une fissure plus longue le long de ce plan, mais aussi cette fissure s'est propagée jusque de l'autre côté de l'empreinte (*Figure III-18 - flèche bleue*). Elle ne débouche cependant pas à la surface de ce côté-ci, car aucune fissure n'est visible au MEB. Ce type de fissure est donc plutôt de type « Half-Penny », et dépasse même la longueur théorique de fissure dans cette configuration. Les deux autres fissures ne traversent pas l'empreinte, et il est impossible de dire si elles sont de type « Half-Penny » ou « Palmqvist ». Pour des orientations intermédiaires aux plans $\{100\}$ et $\{110\}$ (*Figure III-16*), seules les fissures les plus proches du plan $\{110\}$, entre 0° et 10° , sont traversantes. Quand les coins sont à 15° ou plus du plan $\{110\}$, les fissures associées ne sont plus traversantes. Pour les empreintes d'essais sollicitant $\{100\}$, aucune fissure ne traverse l'empreinte, et un ombrage sous la fissure le long de $\{100\}$ est systématiquement présent (*Figure III-18 - flèche rouge*).

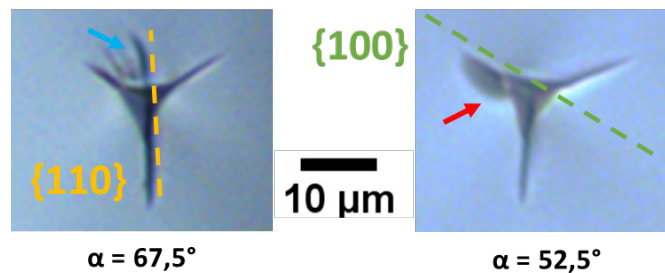


Figure III-18 : Images MO d'empreintes Berkovich réalisées à 400 mN sur 8Y-FSZ monocristallin. Les essais sont orientés en tournant l'échantillon d'un angle α , de façon à solliciter un plan $\{110\}$ ou $\{100\}$. La projection stéréographique associée au cristal permet de repérer les plans cristallographiques visés (Figure III-11). Les flèches rouges repèrent les ombrages visibles sous l'empreinte, les flèches bleues pointent une fissure sous la surface.

Enfin, des essais ont été réalisés avec le même protocole sur le matériau monocristallin, mais pour une orientation cristallographique quelconque, notée $\{qq\}$. Le paramètre $c^{(qq)}$ mesuré pour une force appliquée de 400 mN, de $11,01 \pm 0,43 \mu\text{m}$, se situe entre le paramètre $c^{(100)}$ et $c^{(110)}$, de respectivement $9,84 \pm 0,74 \mu\text{m}$ et $12,41 \pm 0,32 \mu\text{m}$. Finalement, quelle que soit l'orientation testée, la fissuration est toujours plus développée pour le monocristal que pour le matériau polycristallin (*Figure III-19*).

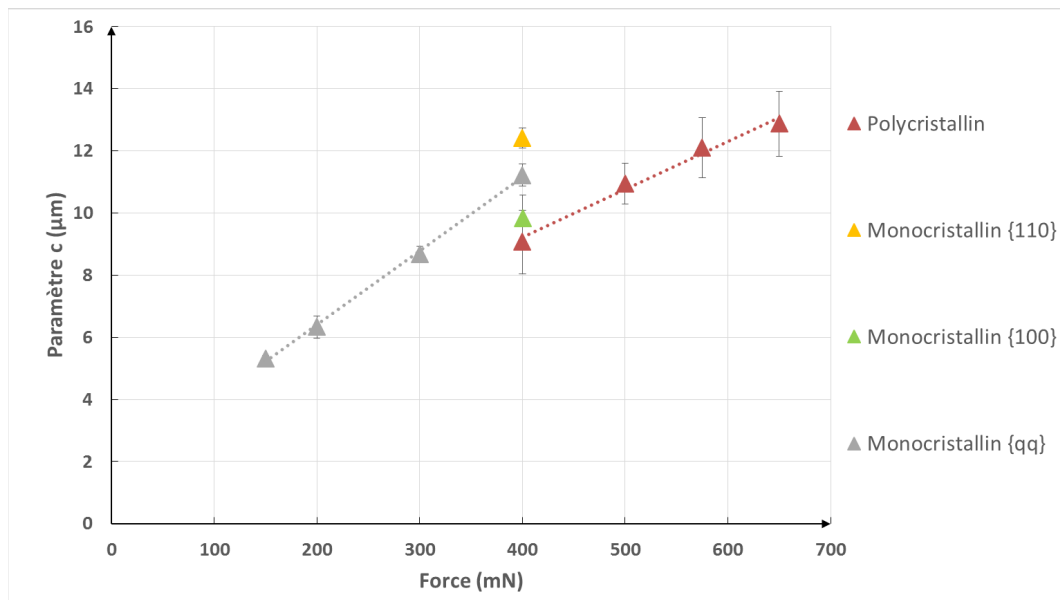


Figure III-19 : Longueur du paramètre de fissuration c mesurée au MEB sur zircon 8Y-FSZ polycristalline et monocristalline. Les résultats sur monocristal sont donnés en fonction de l'orientation de la pointe, noté $\{ijk\}$ quand un des coins sollicite un plan de type $\{ijk\}$. L'orientation notée $\{qq\}$ correspond à une orientation cristalline quelconque. Pour le matériau polycristallin et l'orientation $\{qq\}$ du monocristallin, les mesures sont faites sur les trois fissures des empreintes Berkovich, puis moyennées. Pour les orientations $\{100\}$ et $\{110\}$ du matériau monocristallin, seule la fissure dans un coin aligné avec le plan visé est prise en compte.

III-2.2.3. Discussion

▪ Dureté

Sur la gamme de charges étudiée, la dureté H mesurée sur le matériau polycristallin diminue avec la charge, et vaut autour de 18 GPa à 20 mN jusqu'à environ 15 GPa à 10 N. Ces duretés sont donc cohérentes avec les valeurs de la littérature, comprises entre 18 GPa et 13 GPa pour des charges allant de 10 mN à 50 N [125][126]. Sur le monocristal, elle est plus faible que dans la littérature [128], ce qui pourrait être dû à la différence de taux de dopage, de 9,6% dans la littérature, contre 8% pour la présente étude. Dans le cas monocristallin, et pour la configuration de cristal utilisée, la dureté ne semble pas dépendre de l'orientation cristalline (Figure III-13), ce qui avait déjà été relevé par Pajares *et al.* [128].

De plus, une différence significative de dureté est relevée entre le matériau polycristallin et le matériau monocristallin, ce dernier présentant une dureté environ 2 GPa plus faible sur l'ensemble de la gamme de charge testée. Une explication de cette observation pourrait donc provenir de la présence de joints de grains, qui semblent augmenter la dureté. Cependant, Lian *et al.* [126] ont déjà étudié l'influence des joints de grains sur la dureté d'une zircone 8Y-FSZ et conclurent que le fait d'indenter un joint de grains diminue la dureté mesurée d'environ 20% par rapport à la dureté à l'intérieur d'un grain. Pourtant, ils relevèrent que la dureté d'un matériau à petits grains est équivalente à celle d'un matériau à plus gros grains, mais aussi que la dureté mesurée sur 8Y-FSZ polycristallin est bien plus élevée que celle sur 8Y-FSZ monocristallin [141]. Ces résultats ne sont pas attendus au vu de l'influence des joints de grains sur H . Selon les auteurs, ils pourraient être éventuellement expliqués par une différence de répartition en dopant entre les différents matériaux testés.

La dureté semble diminuer de manière équivalente avec la charge pour les deux échantillons, c'est-à-dire que dans les deux cas, il y a un effet de taille d'indentation, notée ISE , pour *Indentation Size Effect*. Pour l'ensemble des matériaux, l' ISE s'observe à très faible déplacement, quelques microns [142]. Elle est induite par une densité de dislocations plus importante en extrême surface, qui varie donc avec la charge appliquée. Dans le cas des matériaux fragiles, cette baisse de dureté s'observe jusqu'à des forces et déplacements beaucoup plus élevés, parfois jusqu'à des charges allant jusqu'à 50 N [143]. Cette différence de comportement pour les matériaux fragiles s'explique par leur fissuration lors de l'essai d'indentation ; plus la charge appliquée est grande, plus la fissuration générée est importante et plus la dureté apparente est réduite.

▪ Fissuration

Les images de microscopie électronique ou optique mettent en évidence une fissuration préférentielle des plans {110}. En effet, dans ces plans, les fissures sont longues et bien axées sur les arêtes de la pointe. Elles apparaissent également de l'autre côté de l'empreinte, sous la surface, montrant un mode de fissuration plus avancé que pour les autres directions. Par contre, dans les plans {100} ou les plans quelconques $\{qq\}$, la fissure apparente est plus courte et est parfois déviée vers d'autres directions. De plus, les plans {100} présentent un ombrage sous l'empreinte, visible au microscope optique (Figure III-18), qui avait déjà été attribué à une déviation de la fissure vers un plan de type {110} par Pajares *et al.* [144] pour une indentation Vickers. Dans la configuration étudiée, un plan {110} est situé à 45° de la surface, et donc la déviation de la fissure vers ce type de plan est une hypothèse plausible. Ces observations qualitatives sont confirmées par l'analyse quantitative, qui montre que les paramètres c sont plus importants pour les plans {110} (Figure III-15). De plus, quand l'orientation est quelconque, la fissure la plus longue est celle au bout de l'arête la plus proche d'un plan {110}. Par contre, il a été mis en évidence que cette fissure ne dévie que partiellement vers ce plan (Figure III-17).

La comparaison de la fissuration des matériaux monocristallin et polycristallin met en évidence un paramètre c toujours plus important pour le monocristal, quelle que soit l'orientation testée (Figure III-19). Les joints de grains présents dans le matériau polycristallin pourraient donc jouer un rôle sur le développement des fissures autour des empreintes. Ils semblent modérer leur propagation et donc augmenter la ténacité du matériau.

Selon la littérature, le mode de fissuration autour d'empreintes Berkovich, de par sa géométrie, est plutôt du type « Palmqvist » et ce particulièrement à faibles charges [63]. Pourtant, la tomographie au *FIB* du système de fissuration sous une empreinte réalisée à 600 mN dans le matériau polycristallin montre un mode de fissuration mixte (Figure III-6). Les images en microscopie optique du monocristal permettent de conclure également sur un mode de fissuration intermédiaire (Figure III-18), avec en plus, une dépendance de ce mode à l'orientation cristalline.

▪ Ténacité

Finalement, le mode de fissuration n'est pas dans une configuration théorique bien définie, mais la configuration « Palmqvist » semble la plus probable pour les essais Berkovich, et seuls les plans {110} montrent clairement un écart à cette configuration.

Pour cette hypothèse, de nombreuses équations de calcul de la ténacité sont proposées dans la littérature, et la plus couramment admise est celle proposée par Laugier [58], développée pour une pointe Vickers et adaptée pour une pointe Berkovich. Même lorsque cette équation est utilisée, de nombreux coefficients χ différents peuvent être trouvés, dépendants du type de matériaux sollicités, mais aussi d'autres paramètres extérieurs, tels que la qualité de la préparation de surface. Les équations proposées dépendent également de la dureté H et du module de Young E du matériau, et ces paramètres sont souvent mesurés différemment d'une publication à une autre. Par exemple, la dureté peut être calculée par la mesure d'aire de l'empreinte, en utilisant l'aire projetée ou bien l'aire de contact. Elle peut aussi être obtenue par l'analyse des courbes d'indentation : la méthode d'Oliver & Pharr, ou bien par le mode *CSM* (*Continuous Stiffness Measurement*). De même pour le module de Young, il peut être mesuré par essais mécaniques, par propagation d'ondes ultrasonores, ou encore par l'analyse de courbes d'indentation. Chaque méthode donne potentiellement une valeur différente. De plus, pour les échantillons monocristallins, le problème de l'anisotropie se pose. Certains auteurs utilisent la dureté mesurée avec une pointe Knoop, une pyramide allongée avec un rapport longueur sur largeur de 7:1, car ce type de pointe est plus sensible à l'orientation [128]. Pour le module de Young, quelques auteurs proposent également de prendre le module anisotrope, correspondant à la direction normale au plan de la fissure [145].

Dans la présente étude, la configuration dévie probablement du mode théorique de fissuration. De plus, il est difficile de s'y retrouver devant le nombre important de méthodes de calcul de la ténacité. Ainsi, une calibration de l'équation a été effectuée avec des mesures obtenues par des essais *SENB*. La ténacité de référence a été choisie dans la littérature, sur un matériau polycristallin aussi proche que possible de celui de cette étude. Le test réalisé est un essai de flexion de barreaux pré-entaillés, sur une zircone stabilisée par 8% molaire d' Y_2O_3 . La taille de grain moyenne est d'environ 11 μm , soit un peu plus élevée que le matériau testé ici (6 μm en moyenne),

et le taux de porosité est équivalent, d'environ 3%. La ténacité relevée pour cet échantillon est de 1,54 MPa.m^{0,5} [130].

Pour calibrer le coefficient ϕ , le terme χ (III-1) est tracé en fonction de la charge appliquée (Figure III-20), à partir de l'équation (II-39), car elle suppose un mode de fissuration « Palmqvist », E étant pris égal à 220 GPa.

$$\chi = \frac{K_c c^{3/2}}{\left(\frac{a}{l}\right)^{1/2} \left(\frac{E}{H}\right)^{2/3}} = \phi P \quad (III-1)$$

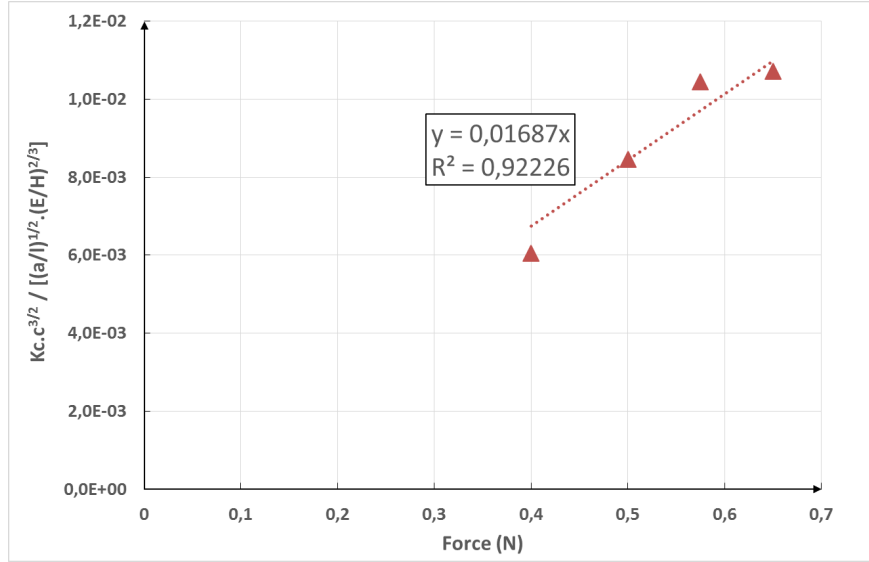


Figure III-20 : Courbe de calibration pour le facteur ϕ dans l'équation de ténacité par mesure d'indentation Berkovich.

Le coefficient directeur de la droite correspond à ϕ , qui est ici de 0,017. Cela est en très bon accord avec le coefficient de 0,016 (équation (III-2)), trouvé par Dukino *et al.* [62], qui ont adapté, par des considérations géométriques, la formule proposée initialement pour une pointe Vickers par Laugier [146]. L'équation (III-2) semble donc bien adaptée à la zircone cubique polycristalline, et la méthode d'indentation, dans la gamme de charges étudiée, donne des résultats cohérents. Elle est donc appliquée au matériau polycristallin et monocristallin (Figure III-21).

$$K_c = 0,016 \left(\frac{a}{l}\right)^{1/2} \left(\frac{E}{H}\right)^{2/3} \frac{P}{c^{3/2}} \quad (III-2)$$

Pour le matériau polycristallin, la ténacité est stable avec la charge entre 400 mN et 660 mN, autour de 1,45 MPa.m^{0,5}. Pour le monocristal dans une direction quelconque, en utilisant la même équation, la ténacité calculée est plus basse, autour de 1,15 MPa.m^{0,5}. De plus, elle semble diminuer avec la charge appliquée : 1,23 MPa.m^{0,5} pour à 150 mN, et 0,98 MPa.m^{0,5} à 400 mN. Pour les essais orientées, la ténacité calculée à 400 mN des plans {100} et {110}, issue des mesures de $c^{(100)}$ et $c^{(110)}$, est de respectivement 1,27 MPa.m^{0,5} et 0,71 MPa.m^{0,5}. Ainsi à cette charge, les mesures sur les plans cristallins encadrent la valeur d'une orientation quelconque. De plus, ces valeurs sont nettement plus faibles que les mesures *SENB* macroscopiques, de 1,9 MPa.m^{0,5} pour les plans {100} et de 1,48 MPa.m^{0,5} pour les plans {110} [128].

La dispersion des valeurs est plus élevée pour le matériau polycristallin, jusqu'à 20% de la valeur moyenne, probablement à cause de l'influence de la microstructure locale : porosités, joints de grains et orientation cristalline, non présentes dans le cas du monocristal.

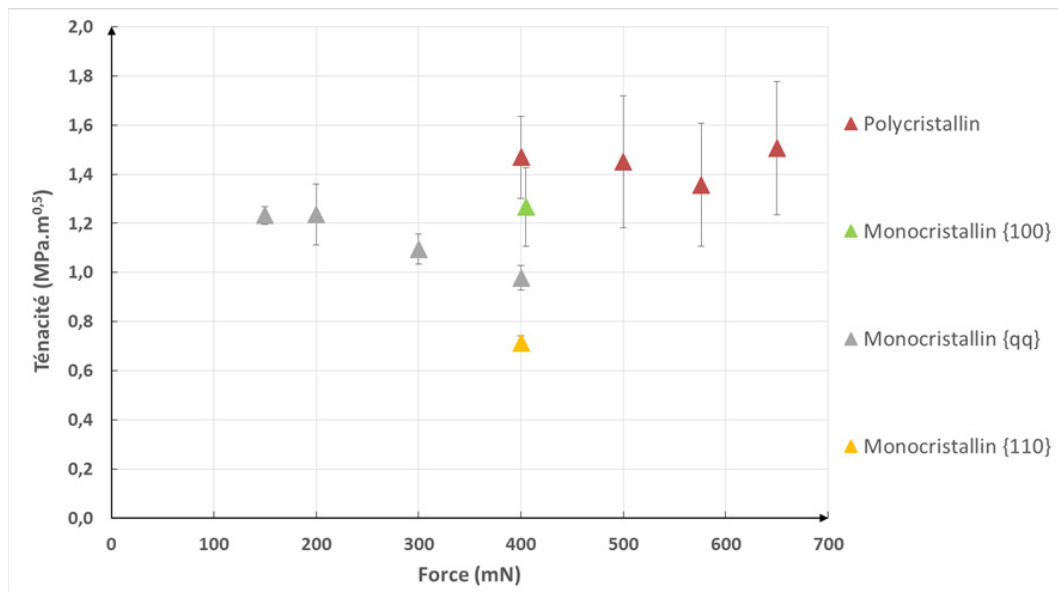


Figure III-21 : Ténacité calculée par mesures de longueur de fissures autour d'empreinte Berkovich en fonction de la charge appliquée. Les calculs dans les plans {100} et {110} sont issus de la mesure d'un seul paramètre c , celui qui correspond au coin de la pointe orientée pour solliciter le plan visé.

■ Influence de la microstructure

La différence de ténacité entre le matériau polycristallin et le monocristal est probablement due aux joints de grains et/ou aux porosités, puisque ce sont les seules différences notables entre les deux matériaux. Les fissures sont plus longues et la ténacité apparente plus faible dans le monocristal. Ainsi, ces deux éléments de la microstructure pourraient être des facteurs de ralentissement de la propagation des fissures et donc pourrait augmenter la ténacité du matériau.

Les plans {110} semblent être propices à la fissuration, mais présentent également un mode de fissuration clairement différent des autres directions cristallines (Figure III-18). De plus, l'estimation de la ténacité dans les plans {100} et {110} par indentation est inférieure aux valeurs obtenues par des essais *SENB* [128]. Ainsi la calibration effectuée sur le matériau polycristallin n'est peut-être pas valable sur le monocristal, en tout cas, pas pour toutes les orientations cristallines. Une explication pourrait provenir du mode de fissuration qui varie et qui serait donc différent du cas dans lequel la calibration a été effectuée. Une autre explication pourrait provenir du type de sollicitation généré par l'indentation. Tout d'abord, il a été noté que la dureté, caractéristique de la déformation plastique entraînée par l'essai, est plus faible pour le monocristal (Figure III-8). De plus, il y a aussi une forte anisotropie élastique : la direction $\langle 100 \rangle$ présente un module de Young de 365 GPa, et de 180 GPa pour $\langle 110 \rangle$. La force motrice de la fissuration dans un essai d'indentation étant liée au rapport E/H , le champ de contraintes pourrait être non équivalent au cas polycristallin [132]. D'ailleurs, il a été vu que pour des positions cristallines quelconques, la fissure générée dans un coin proche de {110} ne dévie que partiellement vers ce plan (Figure III-17). Si le plan {110} était particulièrement propice à la fissuration, la fissure dévierait complètement vers celui-ci. Cette observation laisse donc présager d'une longueur de fissure progressivement plus importante quand l'orientation cristallographique se rapproche de {110}, ce qui ne peut pas être simplement expliqué par la faiblesse du plan {110}.

Finalement, les coins de l'empreinte Berkovich sont à 120° l'un de l'autre, et donc chacun d'eux sollicite un plan cristallographique différent. Ainsi, quand la mesure du paramètre c est réalisée en moyennant les trois fissures qui se sont chacune propagée dans une orientation cristalline différente, la mesure est probablement peu influencée par la cristallographie. C'est d'autant plus vrai quand le cristal étudié a une orientation quelconque. Pour évaluer précisément l'influence des directions cristallines d'un cristal cubique, une pointe avec des arêtes à 90° l'une de l'autre, comme une pointe Vickers, est plus pratique.

III-2.3. Essais Vickers sur monocristal

III-2.3.1. Montage expérimental

Pour l'échantillon monocristallin de zircon et cette orientation de la surface, la pointe Vickers permet de solliciter simultanément avec les quatre arêtes des plans de type $\{100\}$ ou $\{110\}$. Elle est orientée comme indiqué sur la *Figure III-22*, et présente des coins espacés de 90° chacun, et donc cette fois l'échantillon est tourné de $22,5^\circ$ pour tester le plan $\{100\}$, et de $-22,5^\circ$ pour tester le plan $\{110\}$. L'orientation quelconque obtenue pour $\alpha = 0^\circ$, notée $\{?\}$, est différente de l'orientation quelconque des essais Berkovich, notée $\{qq\}$ (*Figure III-22*).

Contrairement à la partie précédente où une pointe Berkovich était utilisée, cette fois les paramètres $c_{ijk}^{(ijk)}$ correspondent à une moyenne des quatre fissures dans les coins de l'empreinte, quand celle-ci est orientée de façon à solliciter des plans $\{ijk\}$.

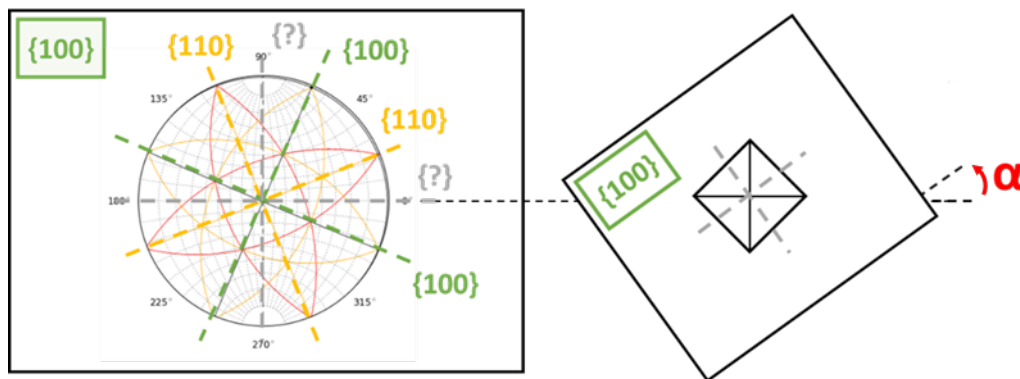


Figure III-22 : Schéma du montage expérimental utilisé pour l'indentation Vickers d'un monocristal de 8Y-FSZ. (à gauche) : Projection stéréographique associée au cristal. La surface est orientée selon un plan $\{100\}$, et donc des plans de type $\{100\}$ et $\{110\}$ sont perpendiculaires à la surface. (à droite) : Orientation de la pointe Vickers par rapport à l'échantillon. Celui-ci peut être tourné d'un angle α pour solliciter des directions cristallines choisies.

III-2.3.2. Résultats

▪ Dureté

La dureté mesurée ne semble pas être grandement influencée par l'orientation cristalline, et l'ordre de dureté observée entre les orientations peut varier d'une charge à une autre (*Figure III-23*). Pour l'unique charge disponible pour la comparaison, la dureté semble un peu plus élevée pour le matériau polycristallin, $14,66 \pm 0,68$ GPa, que pour le monocristal, où H est compris entre $13,13 \pm 0,06$ GPa et $14,18 \pm 0,44$ GPa. Si les duretés sont moyennées entre les différents plans, l'effet de taille sur la dureté semble aussi important que pour la pointe Berkovich, variant d'environ 1 GPa pour une variation de la charge de 500 mN.

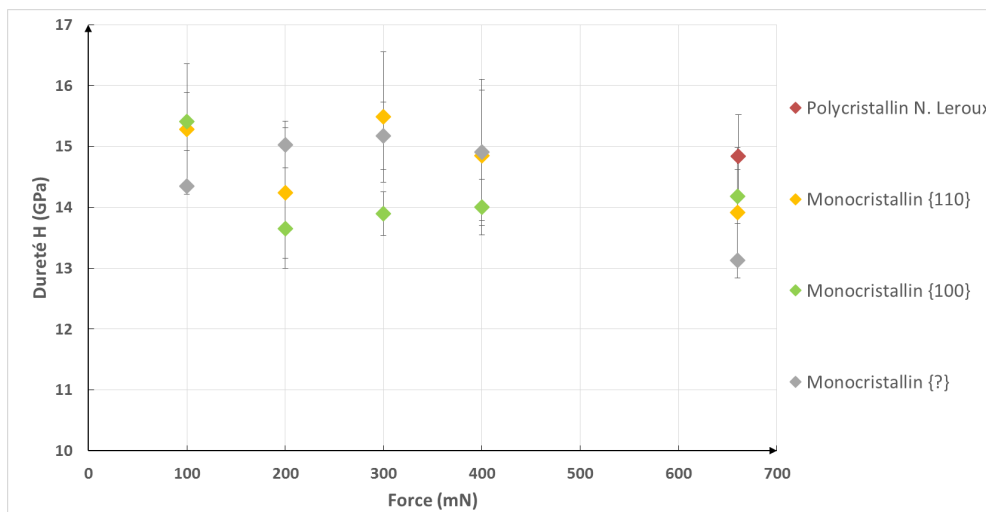


Figure III-23 : Dureté H mesurée par mesures d'aire d'empreinte Vickers au MEB, sur zircon 8Y-FSZ polycristalline et monocristalline. Les résultats sur monocristal sont donnés en fonction de l'orientation de la pointe, notée $\{ijk\}$ quand les coins sollicitent des plans de type $\{ijk\}$. L'orientation notée $\{?\}$ correspond à une orientation cristalline connue mais quelconque.

▪ Fissuration

Lors d'une sollicitation des plans $\{100\}$ et $\{?\}$, il y a des légers décalages entre les axes de la pointe et les fissures, mais aussi des petites fissures additionnelles dans les coins orientés selon des plans $\{100\}$. Pour les plans $\{110\}$, les fissures sont bien alignées avec les axes et parfaitement droites (Figure III-24).

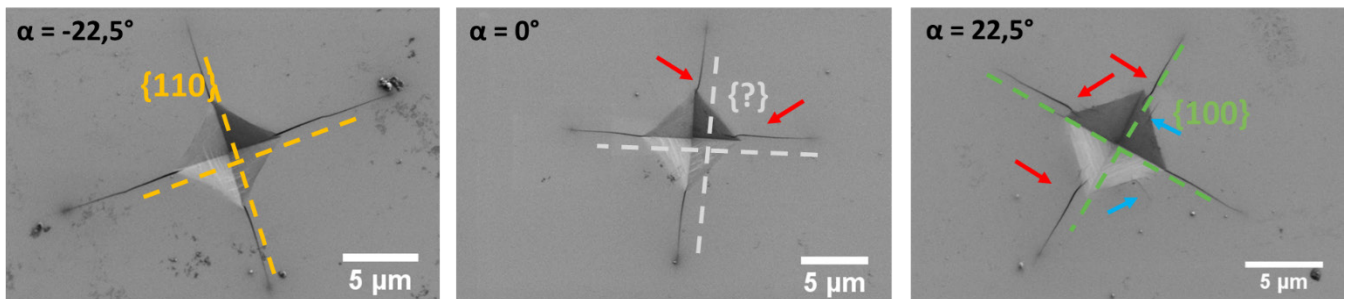


Figure III-24 : Images MEB d'empreintes Vickers réalisées à 400 mN sur 8Y-FSZ monocristallin. Les essais sont orientés en tournant l'échantillon, de façon à solliciter les plans $\{110\}$ et $\{100\}$, ainsi qu'une direction quelconque, notée $\{?\}$. La projection stéréographique associée aux essais permet de repérer les plans cristallographiques visés (Figure III-22). Les flèches rouges repèrent les fissures ayant déviées de l'axe de l'arête de l'empreinte, les flèches bleues pointent certaines fissures additionnelles.

Le paramètre de fissuration c est mesuré pour différentes charges, variant de 100 mN à 660 mN, pour deux orientations cristallines particulières et une quelconque (Figure III-25). Encore une fois, les fissures se situant dans le plan $\{110\}$ sont nettement plus longues que pour les autres orientations. Il y a peu de différence pour les orientations $\{100\}$ et $\{?\}$ jusqu'à 400 mN, puis une différence notable pour 660 mN, où les fissures selon $\{100\}$ sont plus courtes. A noter également que le seuil à partir duquel il y a une fissure dans chaque coin est entre 100 mN et 200 mN pour les plans $\{100\}$, alors qu'il est inférieur à 100 mN pour les deux autres orientations.

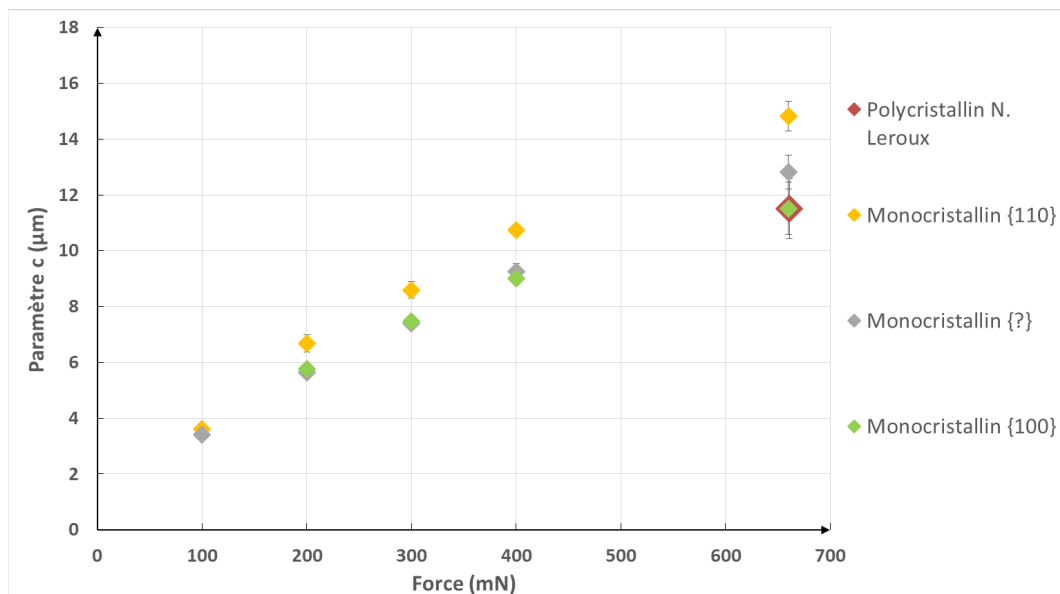


Figure III-25 : Longueur du paramètre de fissuration c moyen mesurée sur les quatre fissures des empreintes Vickers réalisées sur zircon 8Y-FSZ polycristalline et monocristalline. Les résultats sur monocristal sont donnés en fonction de l'orientation de la pointe, notée $\{ijk\}$ quand les coins sollicitent un plan de type $\{ijk\}$. L'orientation notée $\{?\}$ correspond à une orientation cristalline connue mais quelconque.

Observées au microscope optique, les empreintes Vickers ne révèlent rien sur la configuration radiale ou médiane des fissures, car elles sont situées sous les axes des arêtes de l'empreinte, et sont donc cachées derrière elles (Figure III-26). Cependant, pour les orientations $\{100\}$ et $\{?\}$, une fissure sous l'empreinte est observable, orientée dans le plan $\{110\}$. De telles fissures sont distinguables en focalisant non pas sur la surface, mais sous celle-ci, rendant l'empreinte floue. N'étant pas axée sur les coins de la pointe, c'est une fissure de type latérale. De plus, des ombrages sont présents autour et sous les empreintes orientées selon $\{100\}$ et $\{?\}$.

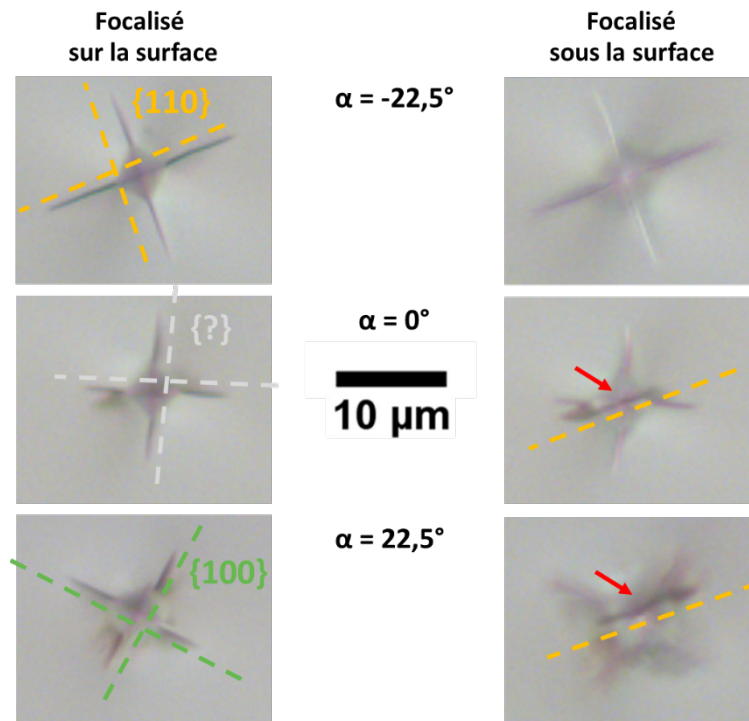


Figure III-26 : Images MO d'empreintes Vickers réalisées à 400 mN sur 8Y-FSZ monocristallin. Les essais sont orientés en tournant l'échantillon, de façons à solliciter les plans $\{110\}$ et $\{100\}$, ainsi qu'une direction quelconque, notée $\{?\}$. La projection stéréographique associée aux essais permet de repérer les plans cristallographiques visés (Figure III-22). La transparence de l'échantillon permet de mettre en évidence une fissure sous l'indent (repérée par une flèche rouge) suivant le plan $\{110\}$, et ce, même quand ce sont les plans de type $\{100\}$ et $\{?\}$ qui sont visés.

III-2.3.3. Discussion

▪ Dureté

La dureté mesurée est en moyenne autour de 15 GPa, et ne semble pas dépendre de l'orientation cristalline. Ces observations sont donc cohérentes avec les essais Berkovich sur le même matériau. Cependant, ces valeurs sont plus basses que les duretés relevées dans la littérature, environ 17,5 GPa pour un essai Vickers réalisé à 500 mN sur un monocristal de zircon cubique dopé à 9,6% en Y_2O_3 [134]. Tout comme les essais Berkovich, cette différence pourrait venir de la teneur différente en dopant, de 8% dans cette étude.

La plus grande dispersion des mesures de H pour l'indentation Vickers, qui peut aller jusqu'à plus de 1 GPa, ainsi que l'ordre non reproductible de dureté entre les orientations sont toutefois surprenantes, et restent inexpliquées.

▪ Fissuration

Par l'analyse des images, il semblerait que les plans $\{110\}$ soient les plus propices à la fissuration. D'une part, sur les images MEB, les fissures les plus droites sont dans les plans $\{110\}$ (Figure III-24). Les autres plans montrent, tout comme l'indentation Berkovich, des déviations, mais aussi de la fissuration latérale additionnelle pour les plans $\{100\}$. Les images de microscopie optique (Figure III-26) montrent également que les fissures dans les plans $\{100\}$ et $\{?\}$ rejoignent des plans de type $\{110\}$ sous l'empreinte, confirmant les observations déjà présentées sur le même type de matériau par Pajares *et al.* [128], obtenues par polissages successifs de la surface. D'ailleurs, les ombrages légèrement visibles sous les empreintes dans $\{100\}$ et $\{?\}$ sont probablement dus à cette déviation [134]. D'autre part, ces observations sont clairement confirmées par les mesures des fissures (Figure III-25), celles dans $\{110\}$ étant systématiquement plus longues que celles dans $\{100\}$. De plus, le seuil de fissuration est plus élevé pour $\{100\}$, montrant que l'amorçage d'une fissure y est plus difficile.

Il semblerait que la différence de fissuration entre l'échantillon polycristallin et le monocristal soit faible (Figure III-25). La valeur du paramètre c pour l'orientation $\{100\}$ est autour de 11,5 μm , tout comme le c obtenu sur le matériau polycristallin, qui est toutefois plus faible que pour $\{?\}$ et $\{110\}$, autour de, respectivement, 13 μm

et 15 μm . Cependant, pour l'échantillon polycristallin, il n'y a qu'un seul point obtenu pour une unique charge. Les essais n'étaient en effet pas très satisfaisants car la fissuration était très perturbée par la microstructure locale, et de nombreuses fissures parasites se formaient (Figure III-3). Ainsi, les formes des fissures étaient assez différentes de celles du monocristal et la valeur de c mesurée semble donc peu comparable.

Dans le cas de l'utilisation de la pointe Vickers, l'hypothèse du mode fissuration « *Half-Penny* » est la plus largement utilisée. La géométrie et la symétrie de la pointe font que les fissures se rejoignent plus facilement sous l'empreinte, formant ainsi plus aisément des demi-sphères [62]. Il n'est pas possible de statuer sur le mode de fissuration ici, il faudrait réaliser des tomographies *FIB* pour en être sûr. Cependant, il est possible de dire que les plans {100} et {?} sortent des configurations théoriques, puisque les fissures ne restent pas perpendiculaires à la surface de l'échantillon et dévient vers un plan {110} sous l'empreinte (Figure III-26).

▪ Ténacité

Le manque de données sur le matériau polycristallin, induit par une fissuration trop chaotique autour de l'empreinte Vickers (partie III-1.3), ne permet pas cette fois de calibrer le coefficient ϕ . La calibration s'est donc faite avec les valeurs obtenues sur le monocristal.

Le procédé de calibration précédemment utilisé pour déterminer le coefficient ϕ (PARTIE II-2.3.3) est réutilisé. La forme de l'équation utilisée est celle d'Anstis (II-38), pour un mode « *Half-Penny* », en utilisant comme référence le K_{IC} déterminé par *SENB* dans la littérature, soit 1,90 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{0.5}$ pour {100}, 1,48 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{0.5}$ pour {110} [128], et 1,54 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{0.5}$ pour l'orientation quelconque {?} [130]. Le module E est pris égal à 220 GPa. Le terme χ à tracer devient (III-3) :

$$\chi = \frac{K_c c^{3/2}}{\left(\frac{E}{H}\right)^{1/2}} = \phi P \quad (\text{III-3})$$

Il en sort des coefficients ϕ très différents du 0,016 couramment utilisé par la formule d'Anstis : en moyenne 0,030 (Figure III-27). Le coefficient ne varie d'ailleurs que légèrement selon le plan cristallin sollicité, il est de 0,033 pour {110}, 0,030 pour {100} et de 0,027 pour {?}.

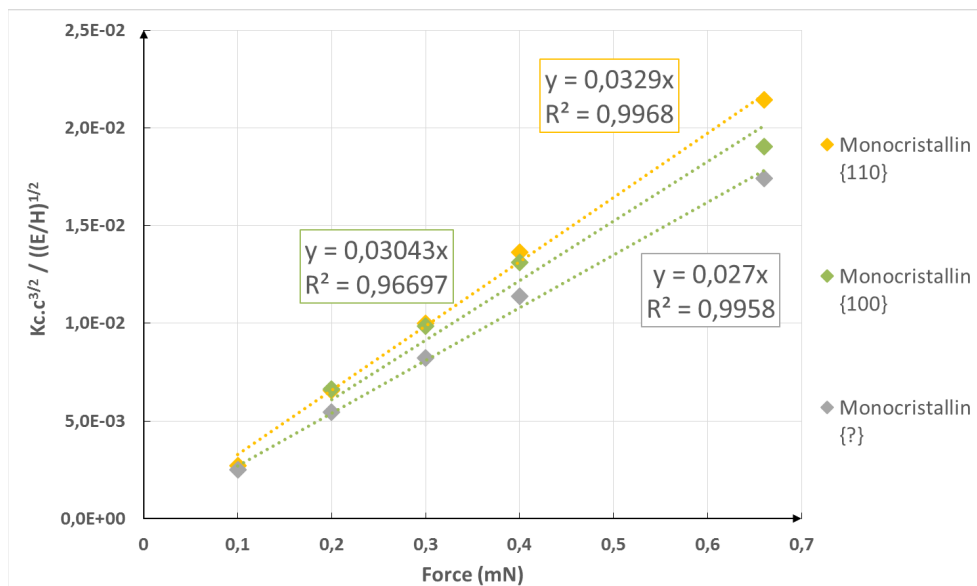


Figure III-27 : Courbe de calibration pour le facteur ϕ dans l'équation de ténacité par mesure d'indentation Vickers (hypothèse de fissuration « *Half-Penny* »).

Le coefficient moyen issu de la calibration est donc très proche de celui proposé par Niihara *et al.* [59], de 0,033 dans l'équation (II-40). L'équation a une puissance de 0,4 pour le ratio E/H , qui est donc différent de celui de la formule d'Anstis, cependant cela entraîne une variation minimale de la ténacité calculée.

$$K_{IC} = 0,033 \left(\frac{E}{H} \right)^{0,4} \left(\frac{F}{c^{3/2}} \right) \quad (II-40)$$

L'équation de Niihara est donc utilisée pour calculer la ténacité (Figure III-28). En moyenne, le K_{IC} du monocristal pour des charges comprises entre 100 mN et 660 mN est autour de 1,3 MPa.m^{0,5}, contre 1,67 MPa.m^{0,5} pour le matériau polycristallin sollicité à 660 mN. En comparant les différentes orientations, les plans de type {110} semblent être les moins tenaces, avec une moyenne de 1,15 MPa.m^{0,5}, contre 1,50 MPa.m^{0,5} pour les plans {100}, et une valeur intermédiaire pour le plan quelconque. La force de 100 mN, qui est d'ailleurs sous le seuil de fissuration pour les plans {100}, entraîne des ténacités pour les plans {110} et {?} supérieures à celles des autres charges.

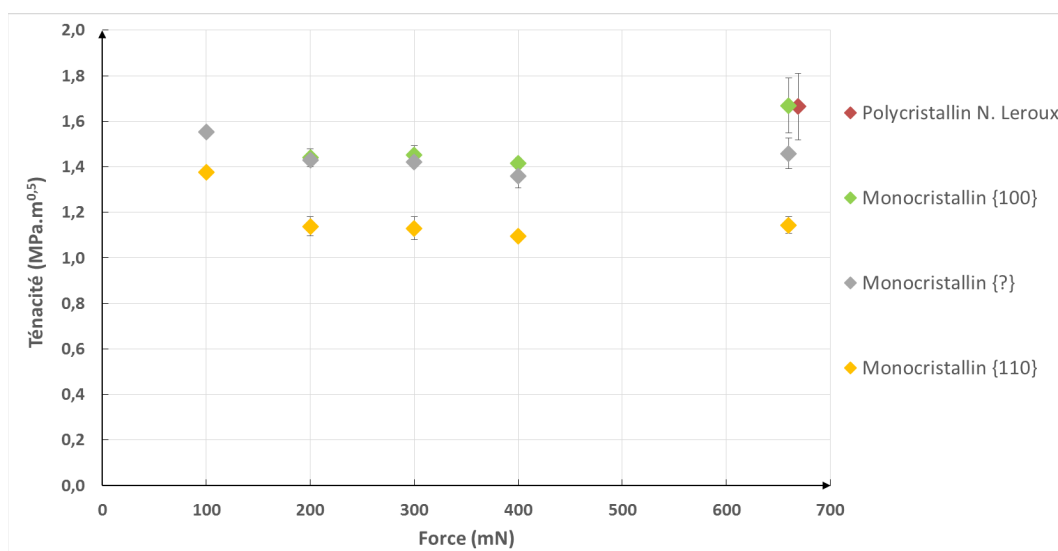


Figure III-28 : Ténacité mesurée par longueur de fissure autour d'empreintes Vickers en fonction de la charge appliquée, et de l'orientation cristalline sollicitée. La formule utilisée est celle de Niihara (équation (II-40)), pour une hypothèse de fissuration « Half-Penny ».

III-2.4. Bilan

La réalisation d'essais d'indentation sur un monocristal permet d'étudier plus clairement l'influence de la microstructure que l'indentation d'un matériau polycristallin couplée à des mesures *EBSD* (partie III-1.3). Cette fois, les effets d'orientation cristallographique ont pu être clairement évalués, de même que l'influence de la microstructure du matériau.

III-2.4.1. Influence de la microstructure

Pour les pointes d'indentation Berkovich et Vickers utilisées, les fissures générées dans le monocristal sont nettement mieux définies que dans un matériau polycristallin : elles sont beaucoup plus droites, et présentent peu de fissures parasites, qui sont souvent induites dans le matériau polycristallin à cause des joints de grains et des porosités. De plus, dans le monocristal, les fissures sont plus longues, et la ténacité qui en découle est donc plus faible. Ainsi, il semblerait que la ténacité augmente quand il y a présence de joints de grains et/ou de porosités, même si les essais de la littérature ne montrent pas de différence notable entre les ténacités de ces deux matériaux (Tableau III-3).

Une calibration permet de trouver quelle est l'équation la plus adaptée pour mesurer la ténacité : celle de Niihara (équation (II-40)) pour la pointe Vickers, et celle de Dukino (équation (III-2)) pour la pointe Berkovich. Dans la présente étude, la calibration est réalisée soit sur le matériau polycristallin puis appliquée au monocristal (pointe Berkovich), soit l'inverse (pointe Vickers). Cependant, il est possible que l'équation qui en découle ne soit pas applicable dans les deux cas, principalement pour deux raisons. D'une part, la configuration des fissures peut varier, cela a d'ailleurs été observé entre les différents types de plans sollicités. D'autre part, la sollicitation, induite par l'incompatibilité de déformation entre la zone plastique et la zone élastique, peut différer avec l'orientation cristalline et/ou à cause de la présence de joints de grains à proximité.

La dureté mesurée, que ce soit avec la pointe Berkovich ou la pointe Vickers, est significativement plus faible sur le monocristal que sur le matériau polycristallin, alors que les joints de grains devraient diminuer cette dureté [126]. Une des raisons possibles pourrait venir de la méthode différente de fabrication entre les deux échantillons, qui pourrait notamment jouer sur la répartition des dopant Y_2O_3 .

Finalement, l'étude du monocristal montre que s'il n'y a pas de joint de grains ou de porosité, la fissuration est mieux définie. Ainsi, si la charge d'indentation est diminuée sur un échantillon polycristallin pour que le paramètre de fissuration c soit plus faible que la taille d'un grain, les conditions des essais devraient être similaires au monocristal. A noter qu'à faibles charges, probablement autour de la charge seuil de la fissuration, les ténacités mesurées semblent plus élevées, probablement à cause d'un système de fissuration moins bien développé (*Figure III-21* et *Figure III-28*). Ce type d'essai ne peut se faire qu'à la condition que le seuil de fissuration soit suffisamment bas pour ne tester qu'un grain, ce qui n'était pas le cas sur la zircone 8Y-FSZ étudiée précédemment par N. Leroux (*partie III-1.3*).

III-2.4.2. Influence de la cristallographie

Les plans {110} semblent moins tenaces, puisque les fissures y sont plus longues. De plus, les fissures générées dans d'autres orientations dévient vers {110}. Cette bifurcation est nettement visible pour les essais Vickers, et cela conforte l'hypothèse que les ombrages visibles sous certaines empreintes sont dus à une déviation angulaire de l'une des fissures. Par contre, à cause de l'orientation du cristal testé, qui présente un plan {100} comme surface, il est impossible de solliciter les plans de types {111}.

La valeur du rapport E/H pour le monocristal est potentiellement affectée par des effets d'anisotropie. Ainsi, il n'est pas évident que la sollicitation soit la même dans les différentes directions cristallines, et donc que les valeurs de longueur de fissures ou de ténacité obtenues soient comparables entre elles. De plus, quand les fissures sont déviées, ou bien en présence de fissures latérales, la surface réellement fissurée est différente de celle évaluée par la mesure des longueurs de fissures en surface, ce qui peut également entraîner une mauvaise évaluation du K_{IC} . Dans la configuration étudiée, Pajares *et al.* [144] estiment que la ténacité de {110} est largement surestimée, suggérant que même si le plan {100} semble le plus tenace des deux, l'écart en termes de valeurs est en réalité moins important que celui mesuré.

III-2.4.3. Influence du type de pointe

La pointe Berkovich permet de générer des fissures mieux définies sur le matériau polycristallin que la pointe Vickers. De plus, de par sa géométrie, elle est moins influencée par l'orientation cristalline. Ainsi, elle semble plus adaptée à des essais à faibles charges, pour lesquelles les empreintes sont potentiellement incluses dans un grain.

La pointe Vickers, dans la configuration du cristal étudiée, est plus pratique pour solliciter une des orientations particulières. Cependant, les résultats obtenus ne sont pas très différents des essais Berkovich orientés, où seule la fissure dans le coin sollicitant le plan d'intérêt est considérée.

Enfin, que ce soit avec la pointe Vickers ou la pointe Berkovich, il faut noter qu'il est délicat de choisir une formule de ténacité adaptée, même pour une configuration de fissuration fixée (« *Half-Penny* » ou « *Palmqvist* »). Idéalement, il faudrait donc systématiquement calibrer les mesures avec une autre méthode standard, ou en tout cas plus conventionnelle.

III-3. Flexion de micro-éprouvettes

L'objectif principal de l'étude de flexion de micro-éprouvettes sur la zircone est de mettre au point l'essai puis de comparer les résultats aux propriétés connues de ce matériau. La mesure de ténacité est l'un des enjeux principaux et l'échelle des expériences soulève des interrogations. En effet, les dimensions d'une éprouvette sont de l'ordre de celles d'un grain, et la zircone cubique semble présenter des plans cristallographiques préférentiels de clivage [128]. Ainsi, une éprouvette usinée dans une direction cristalline donnée pourrait montrer une résistance mécanique différente d'une autre usinée dans une seconde orientation. Afin d'être en mesure de pouvoir valider ou non les résultats obtenus, mais aussi parce que des mesures de résistance mécanique à l'échelle cristallographique peuvent être intéressantes sur le combustible, il a été choisi d'usiner les éprouvettes dans un seul grain du matériau, avec une orientation maîtrisée grâce à des mesures *EBSD*.

III-3.1. Matériau et préparation des échantillons

La zircone cubique polycristalline *8Y-FSZ* est la même que celle utilisée précédemment dans l'étude portant sur l'indentation (*partie III-2.1*). La taille de grains moyenne est de $6,5 \pm 3,1 \mu\text{m}$ et le taux de porosité est de $2,1 \pm 0,5\%$. L'échantillon a été préparé et poli pour pouvoir être utilisé en microscopie électronique, c'est-à-dire qu'il a été poli mécaniquement par des suspensions contenant des particules de taille de plus en plus petites, jusqu'à une étape de finition au polissage vibratoire avec une solution de silice colloïdale de particules de taille de $0,03 \mu\text{m}$. Enfin, pour pouvoir être usinée au *FIB* et imagée au MEB, la surface de l'échantillon a été recouverte d'une couche de carbone d'environ 10 nm pour éviter les effets de charges électroniques.

III-3.2. Fabrication des éprouvettes

III-3.2.1. Dimensionnement numérique

La première étape de cette étude a consisté à dimensionner l'essai. En effet, la fabrication au *FIB* est couteuse en temps et en ressources, ainsi il était souhaitable d'étudier les dimensions et la géométrie des éprouvettes avant, afin de satisfaire aux contraintes liées aux tests. A noter que l'étude de dimensionnement s'est faite sur des éprouvettes entaillées, pour la mesure de ténacité. En effet, pour une géométrie de poutre identique, la force à rupture est plus faible pour des éprouvettes entaillées que pour des non-entaillées. Il est également connu que les contraintes à rupture mesurées sur éprouvettes non-entaillées peuvent présenter des effets d'échelles sur des micro-éprouvettes (*partie II-3.2.1*) : ainsi la valeur cible de contrainte pour l'étude de dimensionnement était incertaine.

Les contraintes de dimensionnement avaient été en partie déterminées au préalable dans le cadre du stage de fin d'étude de M. Lesné [147] :

- La charge à rupture P_c détectable par le système d'indentation : il avait été estimé que la valeur limite pour avoir une bonne précision était de 1,0 mN. La valeur cible a été choisie pour avoir une marge d'erreur, et était donc d'au minimum 1,5 mN.
- La largeur B des éprouvettes : elle devait être suffisamment importante pour être visible au microscope optique pour assurer le chargement *ex situ* avec le nano-indenteur. La valeur visée était donc d'au moins $3,0 \mu\text{m}$. Le paramètre C , qui est la hauteur de la partie basse et triangulaire de la section, est lié à la largeur, car dicté par l'angle avec lequel l'abrasion est réalisée sous la poutre ; il avait été pris à 54° , soit un paramètre C d'au moins $1,0 \mu\text{m}$ (*Figure III-29*).
- La profondeur d'entaille a : elle ne peut pas dépasser une certaine valeur, imposée par les paramètres d'abrasion du *FIB*. La valeur à viser avait été estimée à $0,80 \mu\text{m}$.
- La longueur de la poutre devait être d'environ la taille moyenne d'un grain, afin qu'elle soit contenue dans un seul grain. Elle peut cependant déborder légèrement, si l'entaille et la majeure partie de l'éprouvette sont intégrées dans le grain ciblé. De plus, l'application de la force ne se fera pas au bout de la poutre, mais à une distance $L + S$ (*Figure III-29*), plus faible. La longueur $L + S$ visée était donc de $12 \mu\text{m}$.

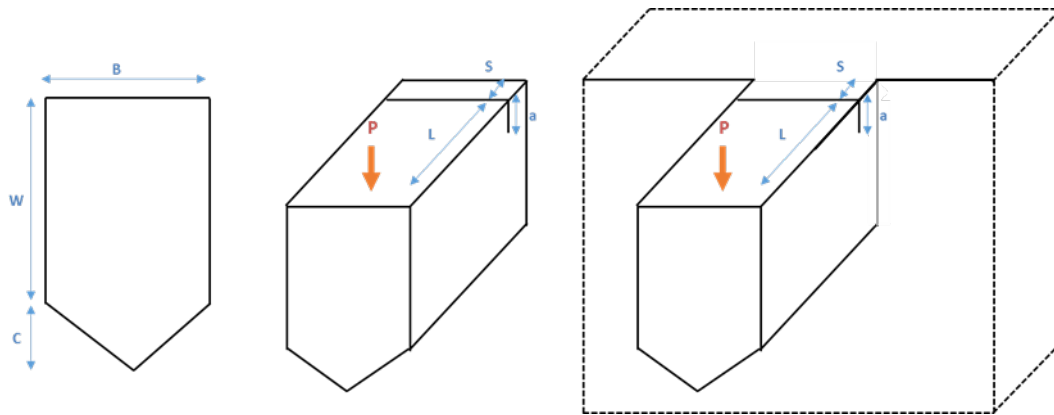


Figure III-29 : Schéma des éprouvettes entaillées à section pentagonale et des grandeurs associées : (a) vue de face ; (b) vue de côté avec encastrement idéal ; (c) vue de côté avec encastrement réaliste (matériau support).

Finalement il reste deux paramètres libres : W et S (Figure III-29). Pour le positionnement de l'entaille par le paramètre S , il est important de considérer l'effet de l'encastrement, qui n'est pas parfait dans l'essai envisagé : l'éprouvette est supportée par de la matière qui a sa propre élasticité (Figure III-29).

Une modélisation par éléments finis du système avec le logiciel Cast3m (CEA, Paris, France) en utilisant un comportement isotrope, a permis de montrer que plus l'entaille est proche du matériau support, plus l'influence de celui-ci est importante, et donc plus la solution de ténacité s'éloigne de la solution avec encastrement parfait (Figure III-30). Cette modélisation est décrite dans une partie ultérieure (partie III-3.4.2). Ainsi, si S est inférieur à 10% de $S + L$, l'influence de l'encastrement est non négligeable. La base qui supporte la poutre est un matériau polycristallin, avec des porosités, des joints de grains et des orientations cristallines diverses. Tous ces éléments ne sont pas pris en compte dans la modélisation. Pour s'en affranchir, il avait été alors décidé de placer l'entaille à au moins 10% de la longueur totale de la poutre.

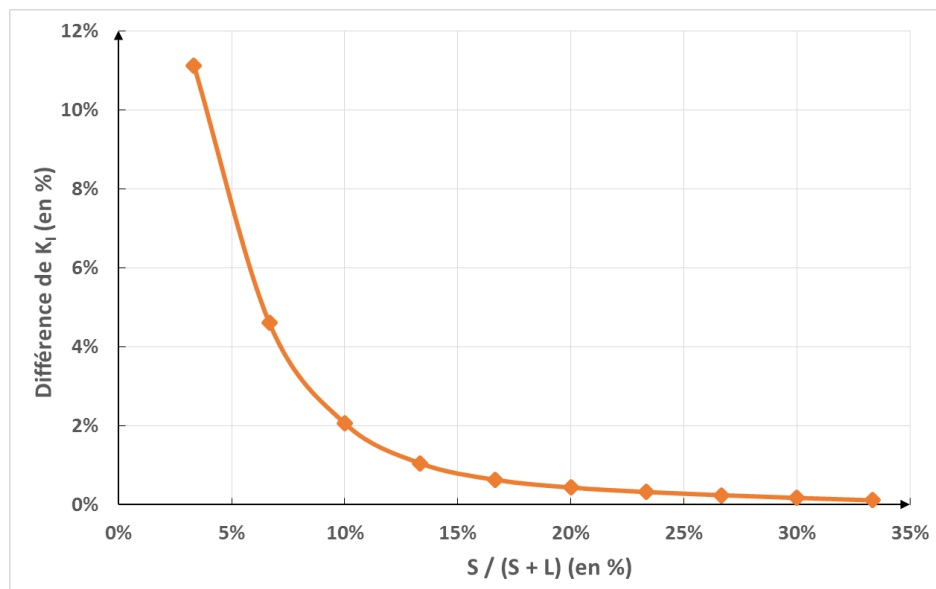


Figure III-30 : Différence de facteur d'intensité de contrainte K_I calculé entre deux hypothèses de calculs : un encastrement parfait et un encastrement réaliste (matériau support), en fonction du ratio $S / (S + L)$ (grandeurs explicitées Figure III-29).

Le dernier paramètre libre W a été déterminé itérativement de façon à ce que la ténacité calculée pour une charge à rupture fixée à 1,5 mN et par le modèle numérique, soit égale à une valeur trouvée dans la littérature. Cette valeur avait été choisie comme égale à $1,54 \text{ MPa.m}^{0.5}$ parce qu'elle a été mesurée par des essais *SENB* sur une zircone polycristalline aux propriétés proches de celles utilisées [130]. A cause de la contrainte sur la valeur de charge, ce calcul ne pouvait converger. Les dimensions ont donc dû être revues à la hausse par rapport aux valeurs cibles précédemment données. La largeur B est passée à $4 \mu\text{m}$, la hauteur C à $1,5 \mu\text{m}$ et la longueur $L+S$ à $10 \mu\text{m}$. Le W calculé qui en découle était finalement de $4,0 \mu\text{m}$ (Tableau III-6) :

Tableau III-6 : Récapitulatif des paramètres visés après dimensionnement pour l'essai de micro-poutres de flexion entaillées (grandeurs explicitées Figure III-29).

Paramètres	Force à rupture P_c	Largeur B	Hauteur W	Hauteur C	Longueur L	Longueur S	Profondeur d'entaille a
Valeur	1,5 mN	4 μm	4 μm	1,5 μm	10 μm	1,0 μm	0,8 μm

III-3.2.2. Orientation cristallographique des éprouvettes

Les cartographies EBSD ont été réalisées avec une caméra Nordlys et le logiciel Aztec (Oxford Instruments, Abingdon-on-Thames, Royaume-Uni). Les acquisitions sont faites avec une tension d'accélération de 20 kV, des pas de 1,5 μm et un regroupement de pixels de 2x2, ce qui amène à un taux d'indexation d'approximativement 93%. A cette tension, la cartographie peut être faite à travers la couche de carbone. Les grains qui semblent suffisamment gros en surface pour accueillir une micro-éprouvette entière sont sélectionnés (Figure III-31 - a).

L'orientation cristalline de chacun de ces grains est ensuite étudiée. Dans la représentation stéréographique de l'orientation d'un grain, les plans principaux du système cubique sont tracés, c'est-à-dire les plans {100}, {110} et {111} (Figure III-31 - b). Quand un de ces plans est perpendiculaire à la surface de l'échantillon, il est représenté par une droite passant par l'origine du graphique. En utilisant la direction de cette droite, et particulièrement l'angle qu'elle forme avec l'horizontale de la représentation, il est possible d'usiner une entaille et/ou une éprouvette (Figure III-31 - c et Figure III-31 - d) de manière à solliciter le plan cristallographique visé.

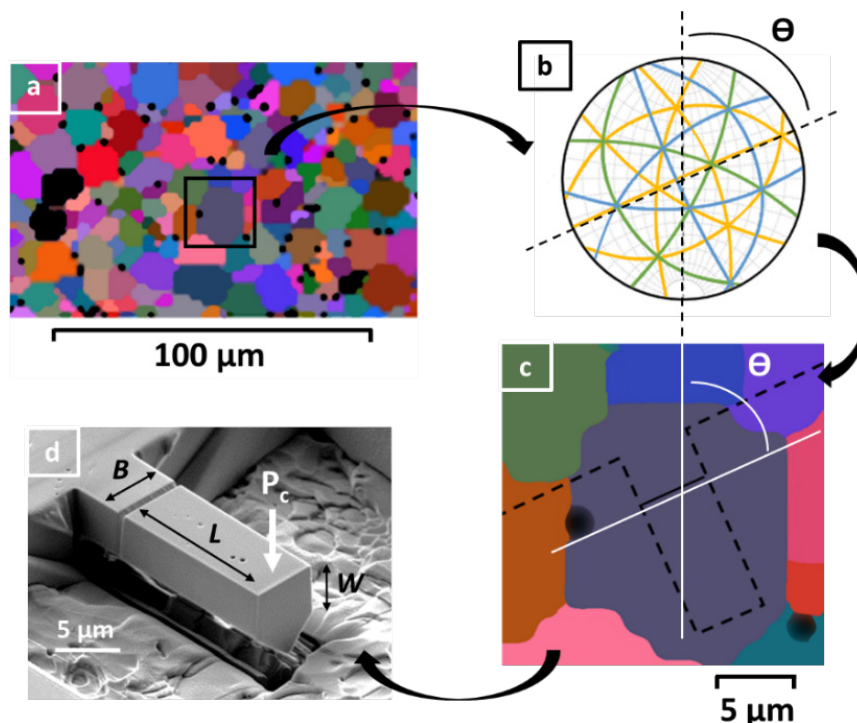


Figure III-31 : (a) Cartographie d'orientations EBSD. (b) Projection stéréographique (dans le référentiel du MEB) liée au grain encadré en noir dans (a). Les familles de plans cristallographiques {100}, {110} et {111} sont représentées par des lignes respectivement, vertes, jaunes et bleues. Dans cette orientation, un plan {110} est parallèle à la surface de l'échantillon. (c) Schéma du contour de la future éprouvette, son axe étant perpendiculaire à un plan de type {110}. L'orientation cristalline de la poutre est entièrement déterminée avec la combinaison des trois angles d'Euler mesurés par EBSD, et de l'angle θ qui détermine la position du plan visé. (d) Micro-éprouvette (ici entaillée) obtenue après usinage FIB. Les cartographies EBSD présentées dans cette figure sont débruitées et corrigées des pixels non indexés avec des filtres.

III-3.2.3. Fabrication des éprouvettes

Les micro-éprouvettes de flexion ont été préparées en suivant les recommandations obtenues par le dimensionnement numérique (Tableau III-6). Elles ont été usinées à l'aide d'un microscope à balayage double faisceau MEB/FIB NVision40 (Carl Zeiss, Oberkochen, Allemagne), avec une tension d'accélération des ions de 30 kV. Le sens de balayage du faisceau ionique se fait toujours vers la surface qui est en train d'être mise en forme, et le mode choisi est un mode « serpent » (Figure II-21). Ces deux paramètres servent à réduire considérablement la redéposition de la matière.

Quand un grain avec un plan cristallographique convenablement orienté est sélectionné (*Figure III-31*), le contour grossier en forme de « U » est creusé par un faisceau ionique perpendiculaire à la surface et avec un fort courant (6 nA), dans un seul grain (*Figure III-32 - a*). Durant cette étape, beaucoup de matière doit être enlevée, ce qui peut durer longtemps. L'utilisation d'un courant élevé permet de réduire la durée de l'étape à quelques heures. Les coupes sous la poutre sont ensuite réalisées avec un courant ionique de 2 nA et avec une inclinaison de l'échantillon de 54° par rapport au faisceau ionique (*Figure III-32 - b*). Ce courant relativement important permet de traverser plus rapidement la matière.

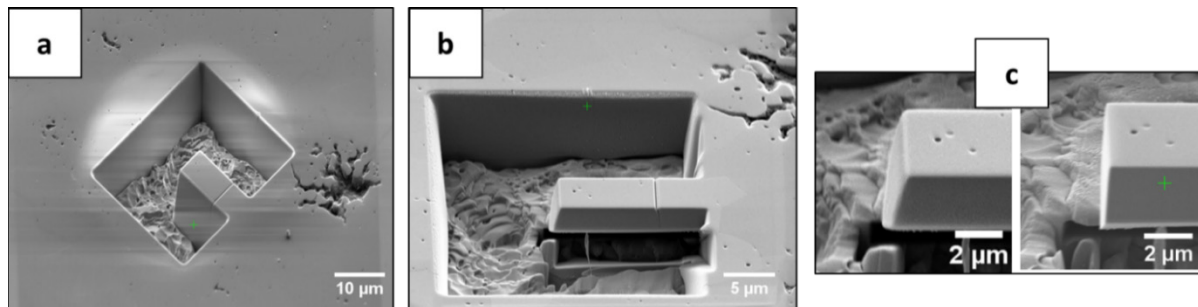


Figure III-32 : Images MEB de différentes étapes de la fabrication des micro-éprouvettes de flexion. (a) Première étape réalisée à fort courant pour donner la forme de « U ». (b) Libération, à fort courant, de la poutre, l'échantillon est à 54° du faisceau ionique. (c) Etape de finition du bout de la poutre réalisée à faible courant pour réduire l'obliquité de la surface : (à gauche) avant l'étape, (à droite) après l'étape.

L'utilisation d'un fort courant permet de réduire la durée des étapes, mais en contrepartie les surfaces obtenues sont obliques, montrant parfois de la redéposition (*Figure III-33*), de plus, la zone affectée par les ions est relativement large (*PARTIE II-3.3*). Pour éviter ces défauts d'usinage, chaque surface de l'éprouvette est retravaillée en appliquant une « sur-inclinaison » de 2° par rapport à l'étape précédente et un courant ionique de 300 pA. Les surfaces obtenues sont finalement bien droites (*Figure III-33 - c*), et la zone endommagée par les ions est réduite. La surface en bout de poutre est également retravaillée finement avec un courant de 80 pA, afin de la rendre bien verticale, car elle sera utilisée pour réaliser les mesures de dimensions de l'éprouvette (*Figure III-32 - c*).

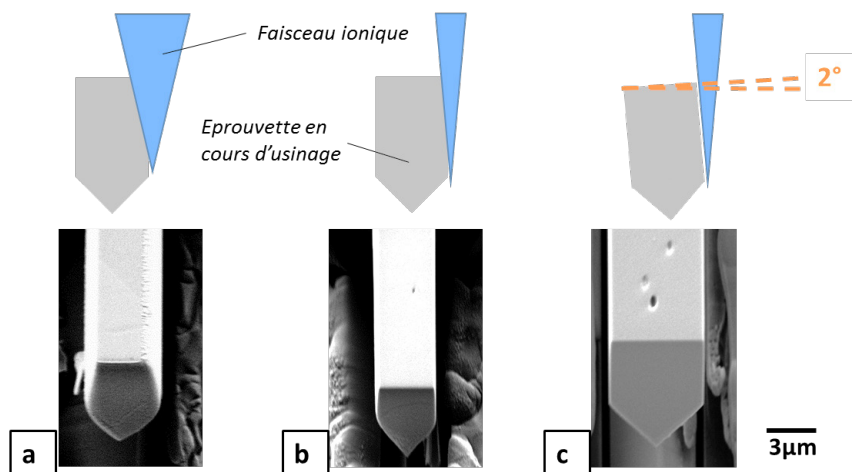


Figure III-33 : Schéma des étapes de fabrication successives des éprouvettes. (a) Le courant ionique est élevé (6 nA), pour creuser rapidement la matière. Le faisceau est perpendiculaire à la surface, et a une forme en V, qui entraîne des surfaces obliques sur l'éprouvette. (b) Le courant ionique est plus faible (300 pA), le faisceau est toujours perpendiculaire à la surface. (c) L'échantillon est « sur-tilté » de 2° de façon à avoir une incidence légèrement inclinée. Cette inclinaison rattrape la forme évasée du faisceau, produisant ainsi des surfaces verticales. En pratique (b) et (c) sont réalisées en même temps, et dissociées dans ce schéma pour une meilleure compréhension.

Lors de la fabrication à fort courant de la préforme en « U » (*Figure III-32 - a*), mais aussi à cause des étapes ultérieures, les surfaces verticales de la préforme sont particulièrement affectées par la redéposition de matière (*Figure III-5*). Ne connaissant pas les propriétés mécaniques de cette matière redéposée, les surfaces sont nettoyées par abrasion au *FIB*. Cependant, pour des éprouvettes entaillées, ce « nettoyage » engendre un décalage relatif de l'entaille, ce qui donne donc un ratio *S/L* plus grands que prévu (*Tableau III-6*). Finalement, le ratio *S/L* des éprouvettes dans la zircone cubique est en moyenne d'environ 30%.

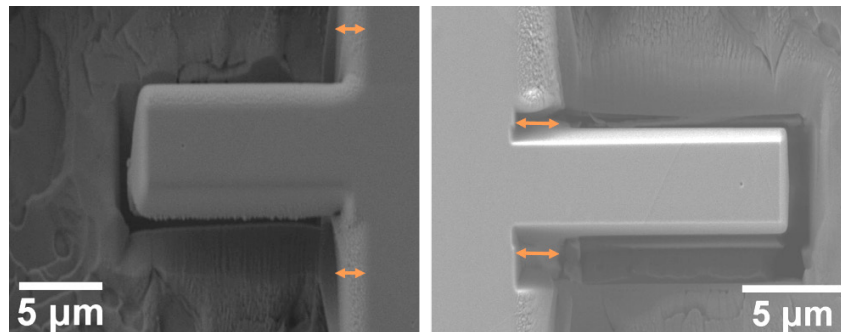


Figure III-34 : Images MEB de : (à gauche) : préforme d'une poutre non-entallée ; (à droite) éprouvette obtenue après les différentes étapes de fabrication. Les flèches orange pointent la matière redéposée qui est ensuite nettoyée par abrasion FIB.

Finalement les éprouvettes obtenues sont inclinées jusqu'à 54° pour mesurer toutes leurs dimensions, en appliquant les facteurs adaptés de corrections d'inclinaison sur les images. En moyenne, elles ont une longueur d'environ $15 \mu\text{m}$ pour une section pentagonale de $5 \times 5 \mu\text{m}^2$, et la profondeur des entailles est autour de $0,7 \mu\text{m}$.

III-3.2.4. Fabrication des entailles simples

Pour mesurer des ténacités, il faut des éprouvettes entaillées. Ainsi, quand un grain avec un plan cristallographique favorablement orienté est sélectionné (Figure III-35 - a), la première étape est de réaliser une entaille directement sur la surface (Figure III-35 - b), positionnée dans ce plan. Le faisceau ionique est d'incidence normale par rapport à la surface de l'échantillon et un faible courant de 10 pA est appliqué pour limiter la dimension du rayon de fond d'entaille. L'entaille est réalisée lors de la première étape ce pour éviter les effets de « sur-usinage » (Figure II-26) au voisinage des arêtes de l'éprouvette [75]. Ensuite les étapes de fabrication de l'éprouvette sont les mêmes que pour l'éprouvette non-entallée, détaillées précédemment (Figure III-35 - c). Pour mesurer la profondeur d'entaille, la mesure est effectuée après le test mécanique. En effet, même si l'entaille est bien visible au MEB, et que sa profondeur peut être approximée sur les bords de l'éprouvette (Figure III-35 - d), il est plus précis de faire la mesure après sa rupture.

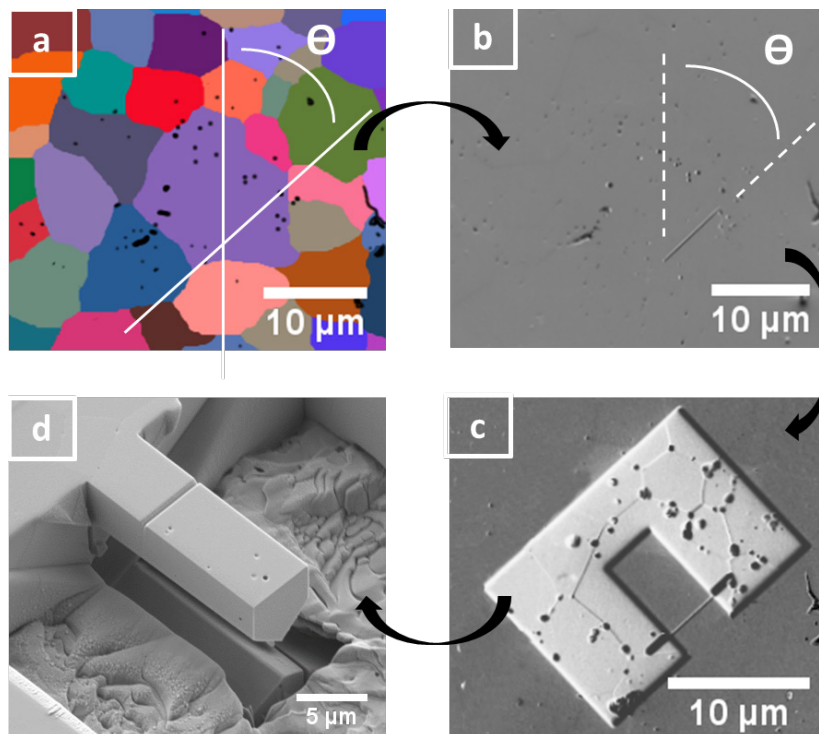


Figure III-35 : (a) Cartographie d'orientations EBSD qui permet de trouver et sélectionner un grain avec un plan cristallographique favorablement orienté. (b) 1^{ère} étape de fabrication, où l'entaille est réalisée directement sur la surface de l'échantillon à l'aide d'un faisceau d'incidence normale et de courant 10 pA . (c) Image MEB de l'étape d'usinage de la forme grossière de l'éprouvette, le courant utilisé est de 8 pA . (d) Image MEB de l'éprouvette obtenue.

III-3.2.5. Fabrication des entailles chevron

Une méthode attractive a été introduite par Mueller *et al.* [85], qui proposèrent de transposer l'entaille chevron macroscopique vers l'échelle de la micromécanique (*Partie II-3.4*). Leur protocole de fabrication a été reproduit ici. Pour fabriquer de telles entailles, la première étape est de fabriquer une poutre, ici à section pentagonale, puis de réaliser une entaille en forme de V inversé. De par sa géométrie, la quantité de matière à évacuer est plus importante que pour une entaille simple. Contrairement à l'entaille simple, l'incidence du faisceau n'est pas normale à la surface de l'échantillon (*partie II-3.4*) et donc le rayon de fond d'entaille ρ est plus important (*Figure II-26*). Afin de réaliser cette forme, l'échantillon est incliné à 9° , entraînant un angle au sommet du chevron de 90° .

Afin d'avoir ρ le plus faible possible (*Figure II-9*), un premier protocole a été testé, où le courant ionique était de 10 pA (*Figure III-36 - a*). Cette option a mené à une forme non-acceptable d'entaille, en tout cas pour un temps raisonnable d'abrasion. La forme du chevron est inachevée : le faisceau ionique semble ne pas avoir traversé toute la hauteur de la poutre. En augmentant le courant ionique jusqu'à 40 pA, la forme du chevron est très satisfaisante (*Figure III-36 - b*). Cependant, la largeur de l'entaille (2ρ) est trop importante : la mesure au MEB est d'approximativement 250 nm, contre une largeur inférieure à 40 nm dans le cas d'une entaille simple fabriquée à 10 pA. Finalement, un dernier protocole a été testé, qui est une solution mixte entre les deux premiers protocoles. Une première entaille large est réalisée à 40 pA, c'est-à-dire comme dans la (*Figure III-36 - b*) et est ensuite affinée avec un courant de 10 pA et un angle de platine de -2° par rapport à l'abrasion précédente (*Figure III-36 - c*). Même si la forme n'est pas aussi nette que lors du second protocole, elle est satisfaisante, tout en ayant un ρ au sommet du chevron plus faible. Il n'est toutefois pas possible d'estimer le rayon dans ce cas, car il n'est pas visible depuis la surface de l'échantillon.

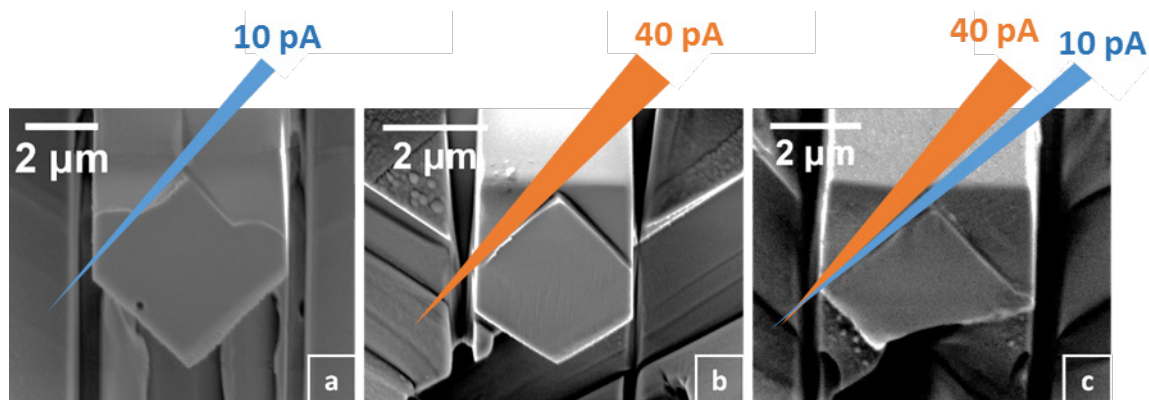


Figure III-36 : Images MEB de micro-éprouvettes avec une entaille chevron, vues de face, après rupture. (a) Un courant d'abrasion ionique de 10 pA a été utilisé ; après une heure d'abrasion, la forme n'est pas complète. (b) 40 pA ; la forme est parfaite, mais la largeur de l'entaille est trop élevée. (c) Premièrement un courant de 40 pA est utilisé, puis l'entaille est affinée par un courant de 10 pA et un angle de platine de -2° par rapport à l'étape précédente. Cette fois la forme et la largeur sont acceptables.

III-3.3. Essais mécaniques de flexion

III-3.3.1. Ex situ au MEB

La plupart des essais de flexion ont été réalisés à l'aide d'un nano-indenteur G200 (Keysight Technologies, Santa Rosa, USA). Ce système utilise un microscope optique (objectif x100) pour effectuer la visée, l'échantillon est placé sur un plateau amovible qui est amené sous l'indenteur lors de l'essai. Il faut donc sortir l'échantillon de la chambre du MEB et le placer dans le système, à l'air. Pour éviter des manipulations supplémentaires d'échantillons, un porte-échantillon sur mesure a été usiné. Il s'adapte dans le MEB et dans le nano-indenteur, évitant ainsi des étapes de collage et de décollage de l'échantillon.

La visée est une étape clé de l'essai de flexion et il est important de bien maîtriser le point d'application de la force. Afin de valider la précision spatiale de cet appareil *ex situ* au MEB, des cibles carrées de $5\text{ }\mu\text{m}$ de côté ont été usinées au FIB. La visée de ces cibles démontre une excellente précision spatiale de l'appareil d'indentation, l'empreinte laissée étant bien centrée (*Figure III-37*). Les mesures de la position du centre de l'empreinte par

rapport aux bords des cibles montrent que la précision spatiale se situe entre 0,1 μm et 0,3 μm . Pour une poutre d'une longueur de 12 μm , cela représente une erreur relative inférieure à 3%.

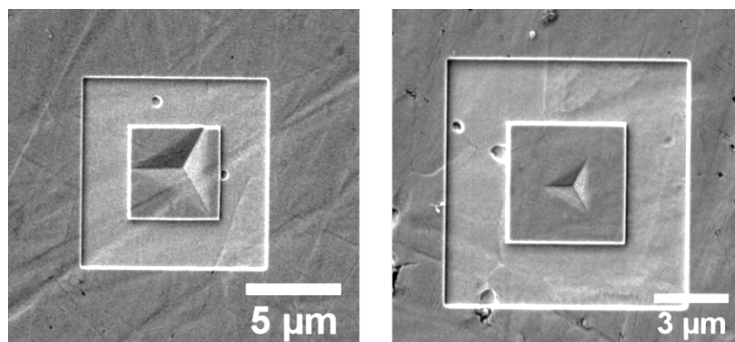


Figure III-37 : Images MEB de cibles d'indentation après des essais de visée avec le nano-indenteur *ex situ* au MEB.

Pour appliquer la force, une pointe pyramidale Berkovich est utilisée, avec un mode de sollicitation à force imposée de 0,05 mN/s. Pour faciliter le positionnement du point d'application de la force, des marques sont réalisées au FIB à faible courant, celles-ci étant visibles au microscope optique (Figure III-38).

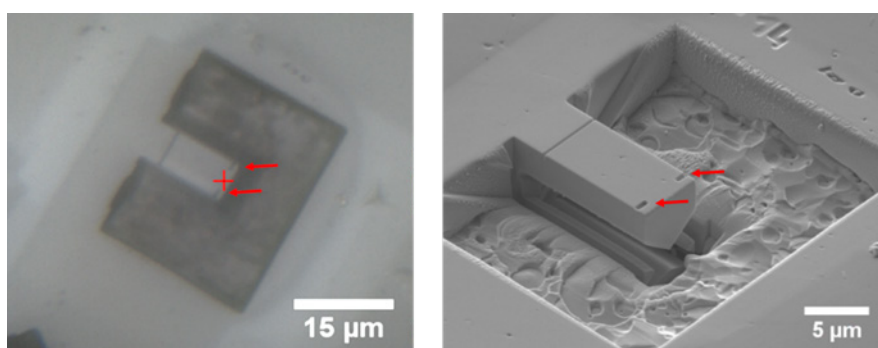


Figure III-38 : (à gauche) Image MO d'une poutre vue par le microscope optique du nano-indenteur, la croix rouge étant la cible. (à droite) Image MEB de la même éprouvette vue au MEB et marquée au FIB pour faciliter la visée d'indentation. Les flèches rouges montrent les traces réalisées au FIB pour faciliter la visée pour la flexion.

III-3.3.2. *In situ* au MEB

Des essais ont également été réalisés avec un nano-indenteur PI 85L SEM (Hysitron, Eden Prairie, Minnesota, USA), installé à l'intérieur de la chambre d'un MEB Nova NanoSEM 450 (FEI, Hillsboro, Oregon, USA). Pour plus de visibilité au microscope, une pointe plus effilée que précédemment est utilisée, de type *Cube Corner*, avec un déplacement imposé de 5 nm/s. Cette fois, le système permet de faire un positionnement de la pointe de manière itérative (Figure III-39). C'est-à-dire que la pointe est positionnée au-dessus de la poutre, et est amenée au contact de celle-ci pour vérifier son bon positionnement. Si ce n'est pas le cas, la pointe est remontée puis repositionnée jusqu'à satisfaction. Des vidéos de chaque flexion sont également enregistrées.

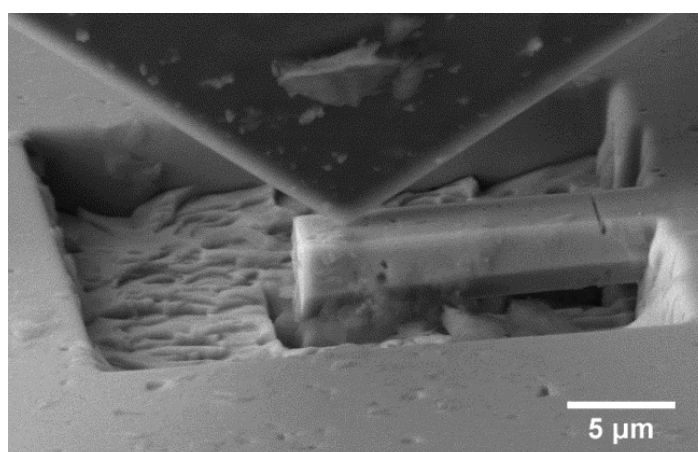


Figure III-39 : Image MEB de la sollicitation mécanique en flexion d'une micro-éprouvette *in situ* au MEB, avec une pointe *Cube Corner*.

III-3.3.3. Courbes obtenues

Les courbes force-déplacement doivent être corrigées en déplacement, car la tête d'indentation pénètre dans la matière [94]. Pour chaque essai de flexion, une indentation est réalisée sur le matériau massif à proximité de la micro-éprouvette, pour la correction. Cet essai est réalisé jusqu'à une force qui correspond à la force à rupture de l'éprouvette. Le déplacement mesuré est ensuite soustrait à la courbe de l'essai de flexion (Figure III-40) : le déplacement sur la courbe corrigée correspond donc à la flèche de la micro-éprouvette. Ces dernières courbes, pour tous les essais, montrent un comportement linéaire jusqu'à la rupture, confirmant ainsi le caractère fragile du matériau.

Cela a pu être également confirmé par les vidéos enregistrées lors des essais de flexion *in situ*. En effet, des tests de charges-décharges montrent que les poutres, à la décharge, reviennent élastiquement à leur position d'origine, sans aucune plasticité, que la poutre soit pré-entallée ou non.

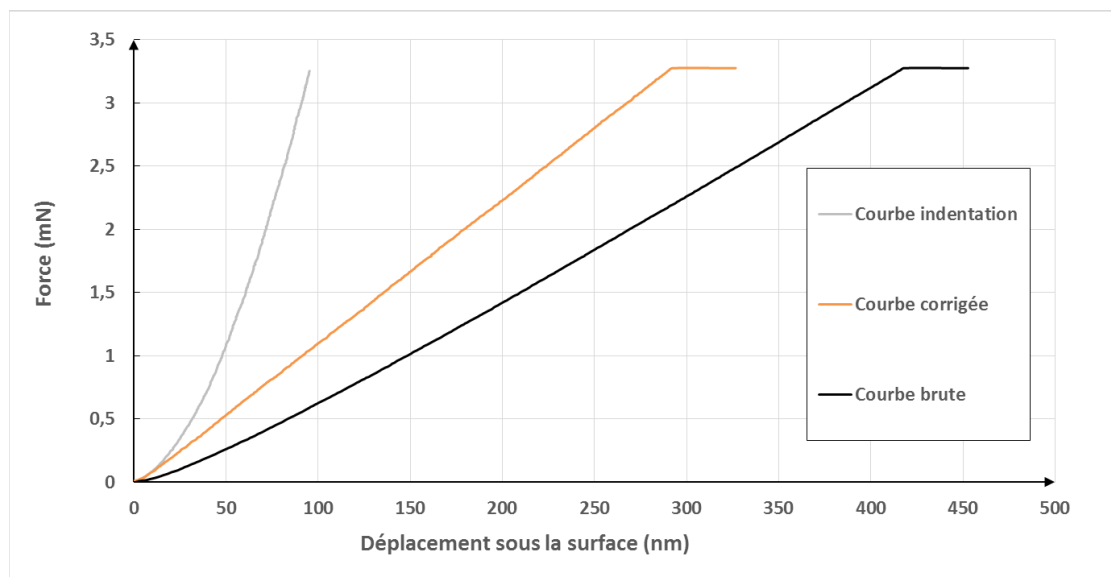


Figure III-40 : Courbe force-déplacement typique obtenue pendant un essai de flexion de micro-éprouvettes. Courbe brute : obtenue pendant l'essai de flexion. Courbe d'indentation : obtenue par un essai d'indentation sur le matériau massif à côté, la charge imposée correspond à la force à rupture de la poutre. Courbe corrigée : obtenue par soustraction de la courbe brute par celle d'indentation.

III-3.4. Méthodes de calcul des propriétés mécaniques d'intérêt

III-3.4.1. Calcul des contraintes à rupture

▪ Méthode analytique

Quand l'éprouvette de flexion n'est pas pré-entallée, la rupture devrait se faire préférentiellement au niveau de son encastrement, où la contrainte est maximale. La contrainte à rupture σ_R d'une poutre à section pentagonale en flexion est donnée par la solution analytique via l'équation (III-4), P_c étant la force à rupture, L la distance entre le plan de rupture et le point d'application de la force (Figure III-31- d), z la distance verticale entre la surface supérieure et le centre de gravité G de la section et I_G le moment d'inertie.

$$\sigma_R = \frac{P_c L z}{I_G} \quad (III-4)$$

Cette formule découle de la théorie des poutres, et donc sous-entend des hypothèses. La force doit être appliquée de manière quasi-statique, la déformation doit être très faible, et la longueur de la poutre doit être longue devant sa hauteur (au moins un rapport cinq [69]). Le moment quadratique de la section est donné par (III-5) :

$$I_G = \int z^2 dx dz = B \int z^2 dz \quad (III-5)$$

Pour une poutre à section pentagonale, il faut calculer la distance entre la surface et l'axe neutre z , ainsi que le moment quadratique de la section I_G . Pour faciliter le calcul, il se fait pour le repère défini dans (Figure III-41).

z peut être calculé avec l'équation (III-6), et I_G avec (III-7), en utilisant les dimensions illustrées dans (Figure III-41).

$$z = \frac{3 W^2 + C^2 + 3C W}{6 W + 3 C} \quad (III-6)$$

$$I_G = \frac{B W^3}{12} + B W \left(z - \frac{W}{2} \right)^2 + \frac{B C^3}{36} + \frac{B}{2} C \left[(W - z) + \left(\frac{C}{3} \right) \right]^2 \quad (III-7)$$

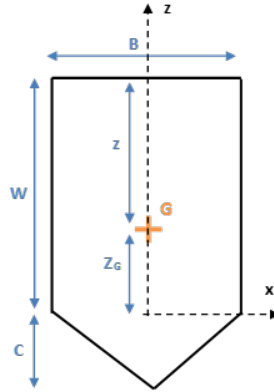


Figure III-41 : Schéma de la section pentagonale et de ses dimensions. G est le barycentre de la section.

▪ Méthode des éléments finis

La contrainte peut aussi être calculée par la méthode des éléments finis, il faut alors positionner des éléments avec des volumes suffisamment petits au moins dans la zone où la rupture se produit [97]. C'est d'ailleurs une solution efficace dans le cas où la géométrie de l'éprouvette ne permet pas un calcul analytique immédiat, comme par exemple si la section n'est pas constante le long de l'éprouvette.

L'éprouvette de flexion est modélisée avec le logiciel Cast3m (CEA, Paris, France) (Figure III-42). Elle est modélisée en trois dimensions, avec des éléments quadratiques (Cu20) et une loi de comportement isotrope et élastique. Le module de Young E est pris égal à 220 GPa et le module de Poisson ν à 0,3. La force est appliquée localement au bout de l'éprouvette, centrée dans la largeur. Deux types d'encastrement sont utilisés (Figure III-42), le premier correspond à un encastrement parfait de la poutre à sa base, les déplacements de la face encastree étant bloqués dans toutes les directions. Le second correspond plus précisément à la réalité, avec un bloc de matière en amont de la poutre, qui a une élasticité propre. Les contraintes calculées par le logiciel sont comparées aux contraintes obtenues par la solution analytique.

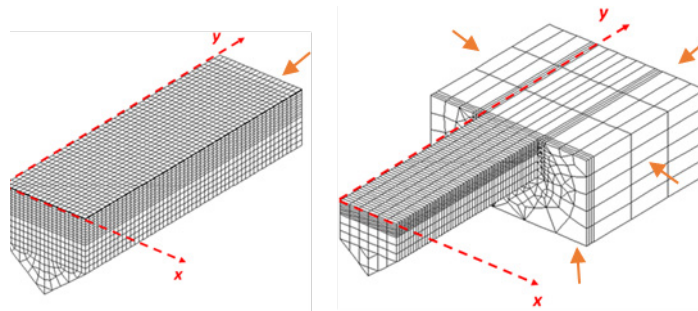


Figure III-42 : Maillages utilisés pour la modélisation par éléments finis des éprouvettes de flexion. Les faces où les déplacements sont bloqués sont pointées par des flèches orange : (à gauche) une poutre avec encastrement idéal ; (à droite) une poutre avec un encastrement prenant en compte la matière qui supporte l'éprouvette.

Premièrement, les contraintes de traction en surface supérieure, où elles sont maximales, sont calculées le long de la poutre et à mi-largeur. Dans le cas de la modélisation FEM, un effet numérique non pertinent est visible autour du point d'application de la force, pour une position relative y proche de 0 (Figure III-43). Puis, la solution numérique est pratiquement identique à l'analytique le long de la poutre, sauf au niveau de l'encastrement. La théorie des poutres prévoit une contrainte croissante avec $y_{relatif}$, et donc maximale à l'encastrement. La

modélisation numérique d'une poutre avec encastrement parfait suit cette tendance, avec une contrainte qui diverge au niveau de l'encastrement, due à une erreur induite par l'effet de bord. Pour l'encastrement plus réaliste, la souplesse de la matière support entraîne une légère décharge des contraintes à la base de l'éprouvette, où la contrainte est environ égale à 80% de la contrainte analytique. Dans ce cas, la contrainte maximale se situe à un $y_{relatif}$ de 0,9.

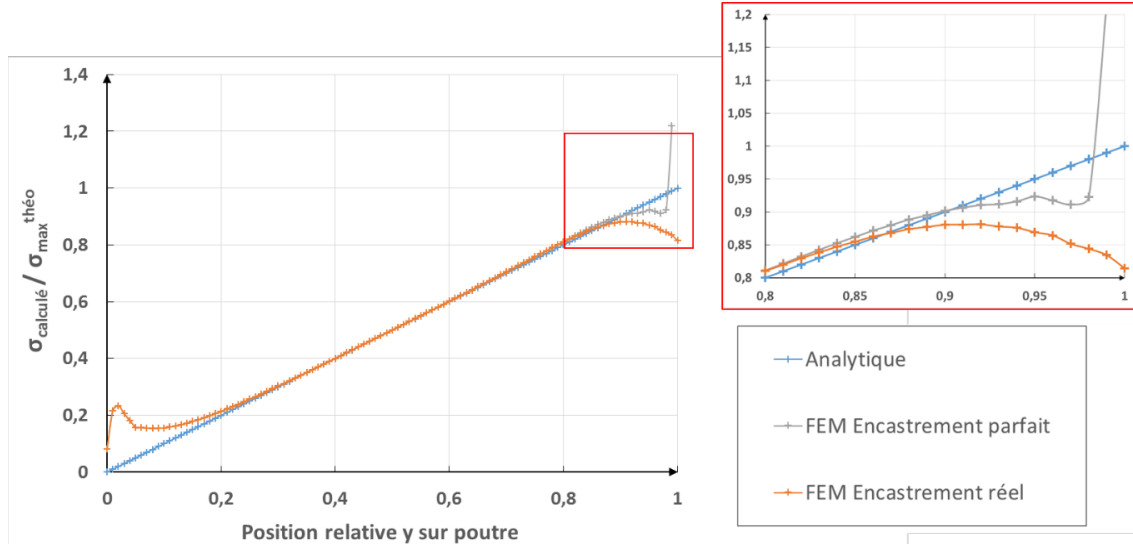


Figure III-43 : Contraintes σ calculées par différentes méthodes, et normalisées par la contrainte maximale théorique, en fonction de la position relative y le long de la poutre. Le repère correspondant est indiqué dans (Figure III-42). La contrainte est calculée au centre de la largeur de la poutre.

III-3.4.2. Calcul de la ténacité : entaille simple

■ Méthode analytique

La ténacité peut être calculée en utilisant une solution analytique avec l'équation (III-8). σ_c est la contrainte à rupture calculée par l'équation (III-4) dans le cas où il n'y a pas d'entaille, a est la profondeur de l'entaille et $\alpha(a/2z)$ est le facteur de forme.

$$K_{Ic} = \sigma_c \sqrt{\pi a} \alpha\left(\frac{a}{2z}\right) \quad (III-8)$$

Le facteur de forme $\alpha(a/2z)$ (équation (III-9)) est pris dans la littérature [99]. Il a été initialement calculé par une méthode numérique d'éléments finis, pour un jeu de dimensions donné, en utilisant une analyse par intégrale- J , avec un comportement isotrope et élastique.

$$\alpha\left(\frac{a}{2z}\right) = 0,974 + 0,242\left(\frac{a}{2z}\right) - 0,630\left(\frac{a}{2z}\right)^2 + 3,710\left(\frac{a}{2z}\right)^3 \quad (III-9)$$

■ Méthode des éléments finis (FEM) : calcul isotrope

La solution analytique précédente est calculée pour des conditions idéales d'encastrement, et pour une géométrie parfaite. Mais la fabrication *FIB* peut mener à des différences entre les dimensions visées et celles obtenues finalement. Dans le but d'avoir un calcul qui limite au maximum les éventuelles imprécisions et qui permet de prendre en compte la matière qui supporte l'éprouvette, un calcul par éléments finis a aussi été réalisé. Dans le cas d'une éprouvette présentant une entaille assimilable à une fissure, le taux de restitution critique d'énergie peut être calculé par l'équation (II-19) (partie II-1.5.2). Il dépend de la force à rupture P_c et de la dérivée de la souplesse C avec la profondeur de fissure a , B étant la largeur de l'entaille et donc de l'éprouvette.

$$G_c = \frac{P_c^2}{2B} \frac{dC}{da} \quad (II-19)$$

Le système est modélisé numériquement avec le logiciel Cast3m (CEA, Paris, France), en utilisant des éléments quadratiques (Cu20) et un comportement élastique isotrope ($E = 220$ GPa et $\nu = 0,3$). La matière qui supporte la poutre est également prise en compte dans la modélisation, en considérant les mêmes propriétés que pour la

matière de l'éprouvette. Des conditions aux limites sont imposées aux faces qui représentent le reste du matériau massif : les déplacements des nœuds sont bloqués dans toutes les directions (Figure III-44). Une optimisation du maillage a permis de montrer qu'il est nécessaire de réduire la taille des éléments autour de l'entaille afin de mieux évaluer le terme dC/da . L'entaille est considérée comme parfaite ici, les nœuds étant juste libérés. La force est appliquée au bout de la poutre en flexion, à la distance L mesurée au MEB (Figure III-31 - d).

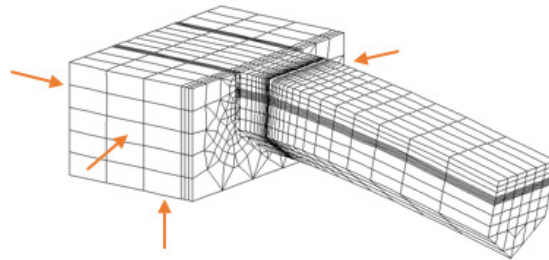


Figure III-44 : Maillage utilisé pour la modélisation par éléments finis (FEM) d'une micro-éprouvette en flexion. Pour plus de clarté, les déplacements sont amplifiés d'un facteur 10 ici. Les flèches orange pointent les faces où les déplacements sont bloqués.

Dans un premier pas de calcul, la souplesse du système C est déterminée avec la profondeur initiale de l'entaille, apparentée à une fissure. Ensuite, dans un second pas, la fissure est incrémentée d'une petite profondeur additionnelle da , et la souplesse est recalculée. La différence de ces deux souplesses amènent au terme dC/da de l'équation (II-19). Pour calculer la ténacité, dans le cas d'un matériau isotrope, la relation entre le taux de restitution critique d'énergie G_c et la concentration critique de contraintes K_{Ic} est donnée par l'équation (II-20). E' est le module de Young efficace donné par $E' = E/(1 - \nu^2)$ en déformation plane, E étant le module de Young et ν le module de Poisson.

$$K_{Ic} = \sqrt{G_c E'} \quad (II-20)$$

Comme déjà mentionné par Brinckmann *et al.* [148], il existe une différence dans la concentration de contraintes le long de l'entaille, le K_I étant plus élevé au centre de la poutre (en déformation plane). Cette étude est réalisée en déformation plane, qui entraîne une majoration de la valeur du K_I . Le module de Poisson est pris égal à 0,3, et le module de Young isotrope est de 220 GPa.

Cette méthode énergétique est connue pour ne pas distinguer les différents modes d'ouverture de fissure [33] (partie II-1.5). De plus, les poutres réalisées dans la zircone cubique sont relativement courtes, d'un ratio L/W d'en moyenne 3, alors que dans le cadre de la théorie des poutres, il est couramment admis qu'il faut avoir un ratio de longueur sur hauteur supérieur à 5 pour négliger complètement le mode II [69].

Afin de quantifier l'influence du mode II sur les systèmes étudiés, une étude paramétrique a été réalisée grâce à la modélisation par éléments finis (Figure III-45). L'essai de flexion est reproduit numériquement en utilisant les grandeurs issues du dimensionnement (partie III-3.2.1). Pour la profondeur d'entaille, trois valeurs sont étudiées, dont une très proche de la valeur visée expérimentalement ($a = 0,75 \mu m$). Les deux autres valeurs encadrent la première ($1,50 \mu m$ et $0,50 \mu m$), pour que l'étude paramétrique inclue toutes les données expérimentales. La méthode de l'intégrale J , implémentée dans Cast3m sous la procédure « G-THETA » est utilisée, et permet de séparer les modes d'ouverture de fissure. La part du mode II dans le facteur d'intensité de contraintes est calculée en fonction du rapport de la longueur L sur le paramètre W de la poutre (Figure III-41).

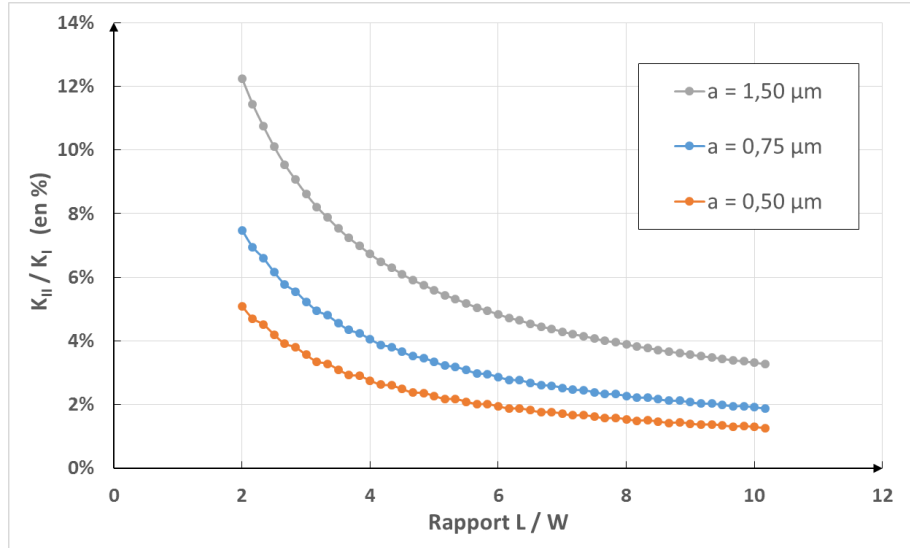


Figure III-45 : Rapport K_{II}/K_I déterminé par la méthode de l'intégrale J en séparant les modes d'ouverture de fissure, en fonction du ratio L/W . Les autres paramètres géométriques sont issus du dimensionnement (Tableau III-6), les grandeurs étant explicitées (Figure III-29).

Cette étude du K_{II} permet de montrer que l'influence du mode II est généralement faible : pour un ratio L/W de 3 et une profondeur d'entaille a de 0,75 μm , la part du mode II est d'environ 5%. Cela permet donc de montrer que la méthode énergétique est bien pertinente ici, et qu'elle donne des résultats convenables pour la plupart des cas. Dans certaines géométries cependant, notamment pour les entailles profondes, il serait alors nécessaire d'augmenter le ratio L/W au-dessus de 6 pour garder la part du mode II en dessous des 5%.

▪ Méthode des éléments finis (FEM) : calcul anisotrope

Comme chaque micro-éprouvette est usinée dans un monograin d'un cristal anisotrope (ratio d'anisotropie de Zener de 0,36 [120]), la question de l'influence de l'anisotropie élastique sur le calcul se pose.

Le même maillage et la même procédure de calcul que précédemment sont utilisés, l'équation (II-19) pouvant être appliquée dans un cas anisotrope [149][150]. Cette fois, les propriétés d'anisotropie élastique sont renseignées dans le logiciel Cast3m via les coefficients orthotropes d'élasticité du cristal de zircon (C₁₁ = 402 GPa, C₁₂ = 95 GPa, C₄₄ = 56 GPa [120]). Ensuite, grâce aux mesures EBSD, l'orientation de la poutre par rapport au cristal est donnée.

L'équation de la ténacité, dans un cas anisotrope, est donnée par (III-10) [150][151] :

$$G_I = K_I^2 \sqrt{\frac{b_{11} b_{22}}{2}} \left(\sqrt{\frac{b_{22}}{b_{11}}} + \frac{2 b_{12} b_{33}}{2 b_{11}} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (III-10)$$

Où :

$$b_{11} = \frac{a_{11} a_{33} - a_{13}^2}{a_{33}}, b_{22} = \frac{a_{22} a_{33} - a_{23}^2}{a_{33}}, b_{12} = \frac{a_{12} a_{33} - a_{13} a_{23}}{a_{33}}, b_{33} = \frac{a_{66} a_{33} - a_{36}^2}{a_{33}} \quad (III-11)$$

Avec, en déformation plane :

$$\begin{aligned} a_{11} &= \frac{1}{E_1}, & a_{13} &= \frac{-\nu_{13}}{E_1} = \frac{-\nu_{31}}{E_3}, \\ a_{22} &= \frac{1}{E_2}, & a_{23} &= \frac{-\nu_{23}}{E_2} = \frac{-\nu_{32}}{E_3}, \\ a_{33} &= \frac{1}{E_3}, & a_{12} &= \frac{-\nu_{12}}{E_1} = \frac{-\nu_{21}}{E_2}, \\ a_{36} &= 0, & a_{66} &= \frac{1}{\mu_{12}} \end{aligned} \quad (III-12)$$

Où 1 correspond à la direction longitudinale de l'entaille, 2 sa direction perpendiculaire et 3 à sa direction transverse. Chaque module de Young E_{ij} , module de Poisson ν_{ij} ou module de cisaillement μ_{ij} , dépendant des directions i et j , a été calculé par le logiciel Cast3m en utilisant la matrice de souplesse associée après les rotations appropriées par les trois angles d'Euler mesurés par EBSD et par l'angle θ déterminé sur la projection stéréographique (Figure III-31).

III-3.4.3. Calcul de la ténacité : entaille chevron

Dans une entaille de type « chevron », le but est que la fissure se propage de manière stable et suive la forme du chevron (partie II-3.4.4). Ainsi la longueur du front de la fissure b croît pendant l'essai (Figure III-46 - a), jusqu'à qu'elle devienne instable à partir d'une largeur critique b_c , qui correspond à une profondeur de fissure critique a_c (Figure III-46 - b).

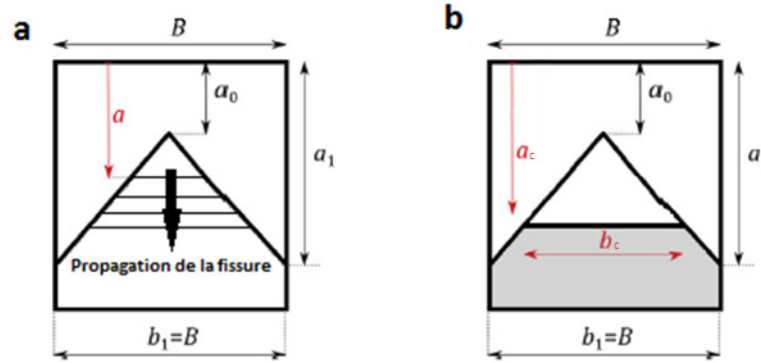


Figure III-46 : Schéma de la : (a) propagation de la fissure dans une entaille chevron ; (b) géométrie de la fissure lors de la rupture, où la fissure s'est propagée de manière stable jusqu'à une profondeur a_c [85].

La profondeur a_c de la fissure au moment de la rupture brutale n'est *a priori* pas visible sur les images MEB du faciès de rupture de l'éprouvette. Ainsi, pour la déterminer, la méthode proposée par Mueller *et al.* [85] est utilisée. L'essai est modélisé numériquement par éléments finis avec le maillage précédemment présenté (Figure III-44), mais avec une entaille de forme triangulaire (Figure III-46).

La propagation de la fissure est modélisée en divisant la hauteur de l'entaille en une trentaine de paliers intermédiaires de profondeur a ; a variant de a_0 au premier pas, jusqu'à a_1 au dernier pas (Figure III-46 - a). A chaque itération est appliquée une même charge F_c : la force à rupture mesurée pendant l'essai. Les différentes valeurs calculées de la flèche de la poutre permettent de déterminer la dérivée de la souplesse C de l'éprouvette par rapport à a , dC/da . L'équation (II-35) permet alors de tracer K_I en fonction de a . La fonction $K_I = f(a)$ n'est pas monotone et l'instabilité est repérée par le minimum de la fonction $K_I = f(a)$ (partie II-2.2.2), qui donne accès à la valeur de a_c . Ensuite, il est alors possible de déterminer la ténacité de l'éprouvette par la formule (II-33) :

$$K_{Ic} = \sqrt{\frac{1}{2} \frac{F_c^2}{b_c} \left(\frac{\partial C}{\partial a} \right)_{a_c} E'} \quad (II-33)$$

III-3.4.4. Calcul du module de Young de flexion

Pour estimer le module de Young d'éprouvettes non-entallées en flexion, il est possible d'utiliser une formule analytique [94]. Cependant, les éprouvettes de cette partie sont pour la plupart entallées, et présentent un ratio hauteur sur longueur inférieur à 3 et donc il faut prendre en compte l'influence du cisaillement [108].

Ainsi, pour déterminer le module de Young de chaque éprouvette, une routine de calcul a été développée avec le logiciel Cast3m. Le système est modélisé avec le même maillage que précédemment, avec un comportement élastique et isotrope, l'éprouvette pouvant être soit entallée soit non-entallée. La matière qui supporte la poutre est également modélisée, son comportement étant pris comme identique à celui du matériau constitutif de l'éprouvette. Le modèle utilise les dimensions déterminées au MEB ainsi que la force à rupture mesurée par le nano-indenteur.

Le déplacement corrigé de l'indentation est utilisé comme entrée du calcul et le module de Young E est un paramètre d'ajustement, déterminé itérativement. A chaque pas de l'algorithme, pour lequel correspond un module de Young entré dans Cast3m, la flèche de la poutre est calculée. La boucle de calcul s'arrête quand le critère de convergence est rempli : si la flèche calculée correspond, à ± 5 nm près, à la flèche mesurée expérimentalement.

III-3.4.5. Calcul des incertitudes

L'écart à la justesse de la mesure des dimensions au MEB est relativement faible : de l'ordre de 0,7%. Par contre l'erreur de répétabilité des mesures est plus importante, elle est de l'ordre de 1,5% pour les mesures d'empreintes d'indentation (*partie III-2.1.3*) et elle peut dépendre de la dimension mesurée. En effet, certaines dimensions des poutres sont soumises à plus d'imprécisions de fabrication au *FIB* que d'autres. Afin d'évaluer les erreurs de répétabilité des mesures de chaque dimension, trois éprouvettes ont été sélectionnées et chacune de leurs dimensions a été mesurée trente fois. L'écart-type relatif de chaque dimension est évalué en faisant la moyenne des écarts-types relatifs des trois éprouvettes (*Tableau III-7*). L'erreur de répétabilité de la mesure de la longueur L est supérieure ou égale à la précision spatiale de positionnement du point d'application de la force (*Figure III-37*). C'est donc l'erreur de répétabilité sur la mesure qui est utilisée pour les calculs d'incertitudes.

La résolution en force et déplacement des appareils de nano-indentation est très fine, respectivement de l'ordre de 0,05 μ N et 0,1 nm, selon les données des constructeurs. L'incertitude sur ces mesures est en fait principalement due à sa lecture, car un saut important apparaît sur la courbe force-déplacement au moment de la rupture de l'éprouvette (*Figure III-40*). L'erreur de répétabilité sur la force à rupture est estimée en utilisant une méthode présentée par Luo *et al.* [75]. Elle consiste à relever les charges sur la courbe force-déplacement, sur les points mesurés juste avant et après la force à rupture. La différence entre la charge à rupture et les charges qui l'encadrent, moyennée sur différents essais, donne une estimation de l'incertitude. Pour cela, 15 essais sont utilisés sur les différentes machines d'indentation employées dans cette étude. L'incertitude varie peu selon le matériel d'indentation, et vaut en moyenne 0,026 mN, soit environ 1,9% d'erreur relative (*Tableau III-7*), ce qui est en bon accord avec la valeur de 0,035 mN trouvée par Luo *et al.* [75].

Tableau III-7 : Erreurs relatives de répétabilité évaluées pour différents paramètres. L'erreur sur les dimensions est obtenue en répétant les mesures de chaque dimension trente fois sur trois éprouvettes différentes. L'erreur sur la force mesurée est calculée par la méthode présentée dans [75].

Paramètres	Largeur B	Hauteur W	Hauteur C	Longueur L	Profondeur d'entaille a	Force à rupture P_c
Erreur relative de répétabilité	1,14%	2,25%	1,33%	3,00%	3,02%	1,86%

Les grandeurs mécaniques évaluées ici (ténacité, contrainte ...) dépendent de nombreuses grandeurs mesurées (équations (III-4) et (III-8)). Soit une de ces grandeurs, notée y ; elle peut se mettre sous la forme d'une fonction à plusieurs variables X_i (III-13) :

$$y = f(X_1, X_2, \dots, X_i, \dots, X_n) \quad (III-13)$$

Pour évaluer les incertitudes liées à ces grandeurs y , deux solutions peuvent être envisagées. La première, la plus directe, consiste à calculer l'écart-type lié à la dispersion des valeurs obtenues. Si le nombre de mesures est suffisamment important, il est possible de considérer que l'écart-type résultant tient compte des incertitudes des différentes grandeurs X_i mesurées. Cependant, ce n'est pas le cas ici ; certaines directions cristallographiques ne présentant que trois éprouvettes de mesure de ténacité. L'autre solution consiste à mesurer l'incertitude Δx_i de chaque composante X_i , puis à faire propager l'incertitude sur la fonction y . Si les erreurs sur les variables X_i sont indépendantes, l'incertitude Δy_i sur la fonction y se calcule selon la loi de propagations des incertitudes (équation (III-14)) : en faisant la somme quadratique des dérivées partielles de y par rapport à chaque variable X_i , chacune étant multipliée par l'écart-type ΔX_i .

$$\Delta y = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial y}{\partial X_i} \right)^2 \Delta X_i^2} \quad (III-14)$$

Cependant, dans le cas de fonctions complexes comme dans les formules (III-4), (III-8) et (II-20), cette équation peut rapidement devenir difficile à résoudre. Une méthode alternative consiste à employer des différences finies. A chaque paramètre de l'équation X_i est associé son écart-type ΔX_i . Après le calcul de $y = f(X_1, X_2, \dots, X_i, \dots, X_n)$ à partir des valeurs nominales des différentes variables X_i , le calcul est refait en remplaçant X_i par $X_i + \Delta X_i$, et le carré de son écart à la valeur nominale est calculé. Ce processus est réitéré pour chaque variable, soit n fois. Finalement la racine carrée de la somme de ces écarts représente Δy (III-15) :

$$\Delta y = \sqrt{\sum_{i=1}^n (f(X_1, X_2, \dots, X_i, \dots, X_n) - f(X_1 + \Delta X_1, \dots, X_i + \Delta X_i, \dots, X_n + \Delta X_n))^2} \quad (III-15)$$

Cette méthode est appliquée aux équations analytiques de calcul de contraintes, de facteurs d'intensité de contraintes et de taux de libération d'énergie (respectivement les équations (III-4), (III-8) et (II-20)). Les valeurs des paramètres X_i utilisées sont la moyenne de ces paramètres sur l'ensemble des éprouvettes fabriquées, et leur écart-type ΔX_i est calculé à partir des écarts-types relatifs évalués dans (Tableau III-8). Les incertitudes relatives qui en découlent sont de l'ordre de 10% pour la contrainte σ ainsi que pour le facteur d'intensité de contraintes K_I , et de l'ordre de 20% pour le taux de libération d'énergie G . Ces valeurs sont cohérentes avec l'incertitude relative sur K_I de 10% trouvée par Luo *et al.* par une méthode similaire [75], mais aussi avec celle sur σ que Matoy *et al.* estimèrent à 7% et surtout causée par des erreurs de mesures de dimensions [80].

Tableau III-8 : Erreurs relatives de répétabilité évaluées en utilisant la loi de propagation des erreurs avec des différences finies. La propagation des erreurs est réalisée en utilisant les incertitudes sur les paramètres du Tableau III-7.

Paramètres	Contrainte σ	Facteur d'intensité de contraintes K_I	Taux de libération d'énergie G
Erreur relative de répétabilité	8,8%	8,9%	18,6%

III-3.5. Résultats

III-3.5.1. Contrainte à rupture

La contrainte à rupture σ_R a été mesurée en sollicitant en flexion des éprouvettes non-entaillées, avec une orientation cristalline aléatoire. La rupture se fait préférentiellement vers la base de la poutre, là où la contrainte théorique est la plus grande (Figure III-47). Le faciès de rupture est lisse et net, ce qui indique une rupture fragile de l'éprouvette.

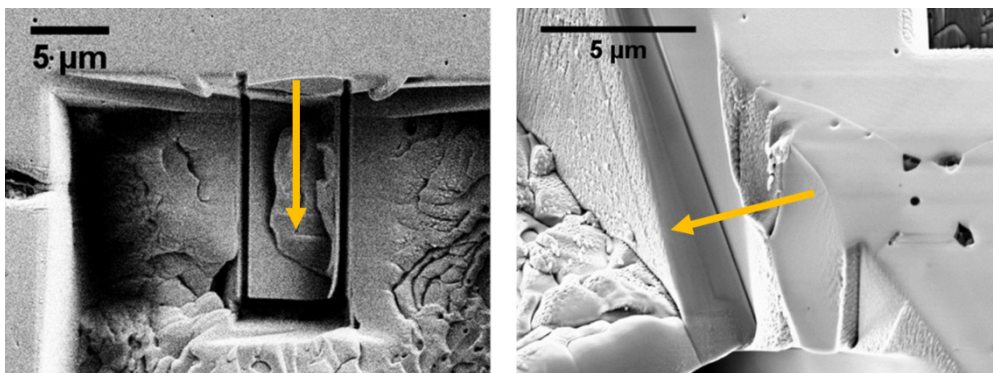


Figure III-47 : Images MEB de micro-éprouvettes non-entaillées sur zircone cubique 8Y-FSZ, après rupture. La rupture s'est produite à la base de la poutre, et le faciès est lisse et net, indiquant une rupture fragile de l'éprouvette. La flèche indique l'axe qu'avait la poutre.

Les contraintes ont été calculées par deux méthodes, une analytique et une autre par modélisation par éléments finis qui prend en compte l'encastrement non-idéal des micro-éprouvettes (*Tableau III-9*). La distance entre le point d'application de la force et la rupture est mesurée entre les marques pour la visée réalisées au *FIB* (*Figure III-38*) et le plan de rupture sur les images MEB. La dispersion des mesures est élevée et le coefficient de variation associé est de l'ordre de 25% de la valeur moyenne mesurée.

Tableau III-9 : Contraintes à rupture obtenues par essais de flexion d'éprouvettes non-entaillées sur zircon cubique 8Y-FSZ, calculées par la solution analytique et par la méthode des éléments finis prenant en compte l'encastrement non idéal. La valeur indiquée est la moyenne des mesures obtenues $\pm$ l'écart-type. L'incertitude issue de la loi de propagation des erreurs est d'environ 10%.

Méthode de calcul	Contraintes à rupture calculées (GPa)
Analytique	$3,01 \pm 1,29$
FEM	$2,58 \pm 0,85$
Nombre d'essais	4

III-3.5.2. Ténacité

▪ *Fractographie*

La surface de rupture de chaque éprouvette entaillée a été imagée au MEB (*Figure III-48*). Les entailles simples, fabriquées durant la 1^{ère} étape de fabrication directement sur le matériau massif, ne présentent aucun effet de sur-abrasion (*partie II-3.4.1*) sur les côtés de la poutre (*Figure III-49 - a*). La surface est toujours lisse, pour tous les plans testés, indiquant une rupture fragile des éprouvettes (*Figure III-48*). Aucune différence majeure de morphologie n'est visible sur les faciès entre les différentes familles de plans testés.

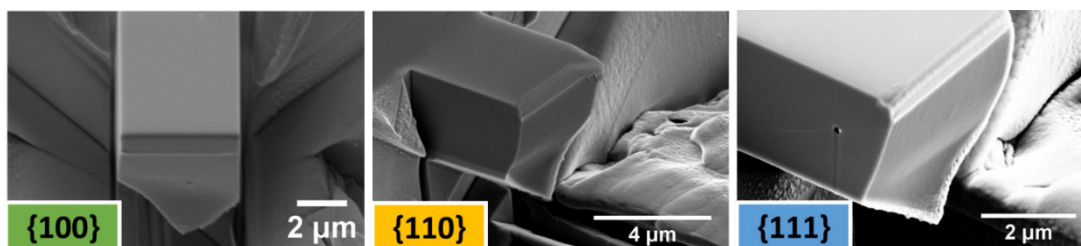


Figure III-48 : Images MEB de surface de rupture de micro-éprouvettes entaillées, fabriquées dans la zircon 8Y-FSZ, en fonction des plans cristallins visés. Les faciès sont lisses et nets, indiquant une rupture fragile des éprouvettes.

La rupture est perpendiculaire à la surface sur la partie haute de la poutre, puis dévie dans la partie basse (*Figure III-49 - b*). Ce phénomène est déjà connu comme l'effet de « cantilever curl » sur des éprouvettes macroscopiques et est décrit sur des éprouvettes microscopiques par Norton *et al.* [95]. Il est entrainé par des contraintes de compression présentes dans la partie basse de la poutre. A cause de cette déviation, la mesure de la profondeur d'entaille peut être faussée si uniquement l'image de face est utilisée. En effet, le contraste lié à l'entaille peut être confondu avec celui lié au changement de direction de la fissure (*Figure III-49 - c*).

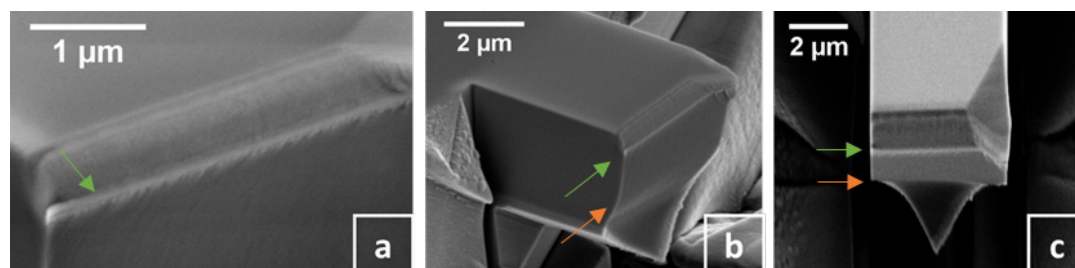


Figure III-49 : (a) Fractographie MEB d'une éprouvette pré-entaillée après essai de flexion sur zircon cubique 8Y-FSZ. Elle montre une surface lisse, synonyme de rupture fragile. (b) Fractographie MEB de la même éprouvette, avec un angle différent. (c) Fractographie MEB de la même éprouvette, de face, avec un angle d'inclinaison de 20°, avec la correction d'inclinaison de l'image adaptée. La flèche verte montre le fond d'entaille, la flèche orange pointe la déviation de la surface de rupture due à l'effet de « cantilever curl » (La marque à droite de la poutre est une empreinte laissée, après rupture de l'éprouvette, par un côté de la pointe Berkovich).

▪ Ténacité mesurée

Des grains individuels de la zircone polycristalline ont été testés. Plus spécifiquement, la force à rupture de trois familles de plans cristallographiques {100} {110} et {111} a été mesurée, puis la ténacité a été calculée par les trois méthodes décrites précédemment (*Tableau III-10*). Aucune différence significative de ténacité n'est relevée entre les trois orientations testées, et ce, même quand l'anisotropie élastique est prise en compte, avec des valeurs moyennes d'environ $1,4 \text{ MPa.m}^{0,5}$, $1,6 \text{ MPa.m}^{0,5}$ et $1,5 \text{ MPa.m}^{0,5}$, pour respectivement les plans {100}, {110} et {111}.

La dispersion est basée sur l'hypothèse d'une distribution gaussienne, et la variation résultante est jusqu'à 15% de la valeur moyenne. Les incertitudes, estimées à 10%, sont majoritairement dues à celles liées aux mesures des dimensions des éprouvettes, l'incertitude sur la charge mesurée étant négligeable. Cette incertitude estimée est de l'ordre de grandeur de la dispersion des valeurs de ténacité.

Tableau III-10 : Résultats de ténacité obtenus sur zircone cubique 8Y-FSZ, pour différentes méthodes de calcul, sur différentes familles de plans cristallographiques. La valeur indiquée est la moyenne des mesures obtenues $\pm$ l'écart-type calculé sur ces mesures. L'incertitude issue de la loi de propagation des erreurs est d'environ 10%. Deux nano-indenteurs différents ont été utilisés pour obtenir ces résultats.

	K_{IC} (MPa.m^{0,5}) des plans cristallographiques testés		
Méthode de calcul	{100}	{110}	{111}
<i>Analytique</i>	1,41 $\pm$ 0,19	1,61 $\pm$ 0,05	1,44 $\pm$ 0,15
<i>FEM isotrope</i>	1,49 $\pm$ 0,13	1,65 $\pm$ 0,04	1,45 $\pm$ 0,14
<i>FEM anisotrope</i>	1,43 $\pm$ 0,09	1,60 $\pm$ 0,14	1,52 $\pm$ 0,15
Nombre d'essais	4	3	7

▪ Comparaison des résultats in situ et ex situ

Les essais de flexion d'éprouvettes pré-entaillées *in situ* et *ex situ* ont donné des valeurs de ténacité très similaires, la différence se situant dans les incertitudes, avec moins de 10% d'écart dans les ténacités mesurées. Trois tests ont été réalisés dans des orientations cristallines différentes, donnant $1,65 \text{ MPa.m}^{0,5}$ et $1,56 \text{ MPa.m}^{0,5}$ dans un plan {110}, et $1,32 \text{ MPa.m}^{0,5}$ dans un plan {111} pour les essais *in situ* ; contre respectivement une valeur de $1,65 \text{ MPa.m}^{0,5}$ et une moyenne de $1,46 \pm 0,15 \text{ MPa.m}^{0,5}$ pour les *ex situ*. Ces résultats montrent que les essais *ex situ*, avec l'aide des marques de pré-positionnement réalisées au FIB, donnent des résultats cohérents avec les essais réalisés dans le MEB.

▪ Entaille chevron

Quel que soit le courant ionique ou le procédé utilisé pour la fabrication de l'entaille chevron (*Figure III-36*), dans tous les cas, et ce avec deux nano-indenteurs différents, aucune propagation stable de la fissure n'a pu être détectée (*Figure II-10*). Aucun évènement sur la courbe de force-déplacement (*Figure III-50*) ou indice sur la surface de rupture n'est visible (*Figure III-36*). Si le calcul est quand même réalisé avec l'hypothèse d'une propagation stable comme décrit par Mueller *et al.* [85], les valeurs de ténacité sont plus dispersées que pour les entailles simples. Elle varie entre $1,06 \text{ MPa.m}^{0,5}$ et $2,60 \text{ MPa.m}^{0,5}$ pour sept tests réalisés, avec une dernière valeur de $4,16 \text{ MPa.m}^{0,5}$ qui a été écartée car jugée aberrante, sans toutefois pouvoir proposer d'explication.

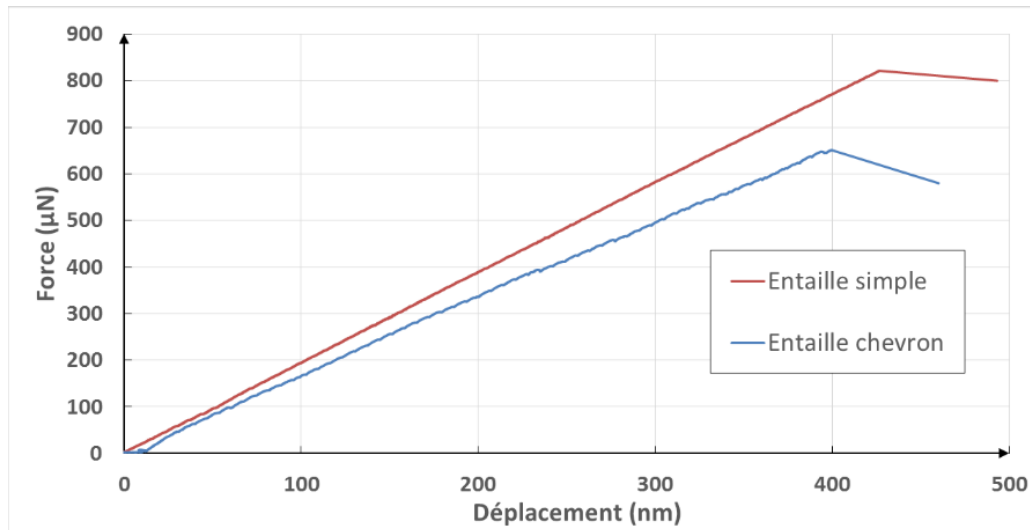


Figure III-50 : Courbes force-déplacement brutes obtenues par flexion de micro-éprouvettes entaillées sur zircone cubique 8Y-FSZ, dans le cas d'une entaille simple et dans le cas d'une entaille chevron, ici avec le nano-indenteur *in situ* au MEB. Aucun évènement de propagation stable de fissure n'est notable.

■ Modules de Young

La procédure de calcul des modules E par calculs FEM a été appliquée aux essais de flexion d'éprouvettes entaillées, orientées cristallographiquement (Tableau III-11). Ces valeurs ont été obtenues par des essais réalisés sur deux machines distinctes de nano-indentation (partie III-3.3). Même si la précision en charge et déplacement est différente, les résultats sont similaires sur les deux équipements. En moyenne, les mesures donnent 179 ± 50 GPa, 161 ± 2 GPa et 141 ± 36 GPa, respectivement pour une sollicitation selon les directions $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ et $\langle 111 \rangle$.

Tableau III-11 : Résultats des calculs de modules de Young E , sur éprouvette entaillées usinées dans 8Y-FSZ, déterminés par la méthode des éléments finis. La valeur indiquée est la moyenne des mesures obtenues $\pm$ l'écart-type calculé sur ces mesures. Le module était un paramètre ajusté en comparant la flèche calculée numériquement et la flèche mesurée expérimentalement. Deux nano-indenteurs différents ont été utilisés pour obtenir ces résultats.

	Modules de Young E en fonction des plans cristallographiques testés (GPa)		
Méthode	{100}	{110}	{111}
<i>FEM isotrope</i>	179 ± 50	166 ± 10	141 ± 36
<i>Théorique (III-16)</i>	365	180	153
Nombre d'essais	4	3	7

Ces résultats peuvent donc être comparés aux valeurs théoriques de la rigidité du cristal de zircone cubique, obtenues par l'équation (III-16) qui utilise les valeurs des coefficients d'élasticité (Tableau III-1). Le module d'une poutre de flexion orientée dans un plan $\{ijk\}$ correspond au module de la direction $\langle ijk \rangle$ normale à ce plan.

$$\frac{1}{E_{\langle ijk \rangle}} = \frac{c_{11} + c_{12}}{(c_{11} - c_{12})(c_{11} + 2c_{12})} - 2 \left[\frac{1}{(c_{11} - c_{12})} - \frac{1}{2c_{44}} \right] (i^2 j^2 + j^2 k^2 + k^2 i^2) \quad (III-16)$$

III-3.6. Discussion

III-3.6.1. Contrainte à rupture

▪ Comparaison des méthodes de calculs

La contrainte calculée analytiquement et celle calculée par *FEM* sont équivalentes le long de l'éprouvette (*Figure III-43*), sauf vers son encastrement. Le modèle *FEM* prévoit une contrainte qui diminue légèrement vers la base de la poutre à cause du matériau support, qui a une souplesse propre. Cependant, les éprouvettes non-entaillées ont toujours rompu à leur base (*Figure III-47*). Cette observation est cohérente avec le modèle analytique, qui prévoit une contrainte maximum à l'encastrement, mais ne l'est pas pour le modèle *FEM*, qui prévoit une rupture à environ 10% de la longueur de la poutre. Le paramètre σ_R calculé par éléments finis est donc plus faible que celui calculé par la formule analytique : en moyenne $2,58 \pm 0,85$ GPa contre $3,01 \pm 1,29$ GPa pour la solution analytique (*Tableau III-9*).

Le modèle analytique prévoit correctement le lieu de la rupture, et les résultats ne sont pas très éloignés de la solution *FEM*. L'analyse des contraintes à rupture est plus comparative, entre les plans par exemple, qu'absolue. En effet, elle est soumise à un fort effet d'échelle et donc la contrainte mesurée à l'échelle n'est pas applicable comme telle, par exemple dans les modèles de simulation du comportement du combustible. Pour toutes ces raisons, dans la suite de l'analyse, la contrainte à rupture utilisée sera calculée par la solution analytique.

▪ Effets d'échelle

Les valeurs de contraintes à rupture se situent autour de $3,01 \pm 1,29$ GPa, contre entre 180 MPa et 350 MPa pour les valeurs de la littérature mesurées à l'échelle macroscopique (*Tableau III-3*). Les mesures microscopiques sont donc, en ordre de grandeur, dix fois plus élevées que les essais aux dimensions standards. Ce phénomène a déjà été relevé dans la littérature, entre autres, sur de la zircone partiellement stabilisée [94].

Lors d'essais de micromécanique, la contrainte à rupture se rapproche de la contrainte théorique à l'échelle atomique du matériau [80]. Si le modèle d'Orowan est utilisé pour estimer les contraintes à rupture du cristal parfait (*partie II-1.1.1*), les valeurs varient entre 50 GPa pour les plans {100} et 25 GPa pour {111}, soit environ dix fois plus élevées que les mesures effectuées par flexion de micro-éprouvettes.

De plus, à l'échelle microscopique la densité de défauts testée, tels que les porosités, est nettement plus faible. D'une part, un tri visuel est fait lors de la préparation des micro-éprouvettes : la zone de fabrication est choisie afin d'éviter les porosités, en tout cas celles visibles en surface. D'autre part, statistiquement, la réduction du volume sollicité entraîne une augmentation de la contrainte mesurée (*partie II-1.1.3*). En effet, pour une contrainte donnée, la probabilité de rencontrer un défaut critique qui initie la rupture diminue avec le volume de l'éprouvette.

Afin d'estimer l'effet d'échelle induit, il est possible d'utiliser le modèle statistique de Weibull (*partie II-1.1.3*). Le module de Weibull m est considéré comme égal à 7,9 à partir de données bibliographiques (mesuré macroscopiquement sur de la zircone 8Y-FSZ par flexion trois points [152]). Le volume effectif d'une éprouvette de flexion trois points est donné par l'équation (II-27) [26]:

$$V_E^{3 \text{ points}} = \frac{V}{2(m+1)^2} \quad (\text{II-27})$$

Le volume effectif d'une éprouvette quelconque est calculé par l'équation (III-17) ; avec $\langle \sigma \rangle$ la contrainte positive dans l'éprouvette, car seulement les contraintes de traction sont considérées.

$$V_E = \int_V \left(\frac{\langle \sigma \rangle}{\sigma_{max}} \right)^m dV \quad (\text{III-17})$$

Et donc, le volume effectif d'une éprouvette de flexion encastree d'un côté, avec une section pentagonale (*Figure III-41*), est donné par l'équation (III-18) :

$$V_E^{\mu\text{-poutre}} = \frac{B L z}{(m+1)^2} \quad (\text{III-18})$$

Dans [152], la contrainte à rupture moyenne est de 300 MPa. Le volume des éprouvettes est de 60 mm³, ce qui engendre un volume effectif V_E^{macro} de 0,38 mm³. Pour les micro-éprouvettes, le volume effectif V_E^{micro} est calculé par l'équation (III-18) en prenant les dimensions moyennes des éprouvettes non-entaillées testées ; il vaut 1,7.10⁻¹⁰ mm³.

La contrainte à rupture d'une éprouvette microscopique σ_{micro} estimée par l'équation (I-5) vaut 4,5 GPa. Cette estimation par changement de volume dans le modèle de Weibull est assez proche de la valeur moyenne mesurée expérimentalement, de 3,01 ± 1,29 GPa.

$$\left(\frac{\sigma_{micro}}{\sigma_{macro}}\right) = \left(\frac{V_E^{micro}}{V_E^{macro}}\right)^{-1/m} \quad (I-5)$$

Cette méthode donne donc une meilleure estimation que l'équation d'Orowan qui considère un cristal parfait et prévoit une contrainte au moins dix fois supérieure à celle mesurée par flexion de micro-éprouvette.

Cependant, en toute rigueur, il faudrait réaliser de nombreux essais microscopiques pour mesurer le module m à cette échelle. En effet, celui-ci reflète la répartition des défauts dans la matière, alors qu'entre un volume de matière d'une éprouvette macroscopique et celui d'une éprouvette micrométrique, la répartition est potentiellement différente.

III-3.6.2. Ténacité

■ Comparaison des méthodes de calculs

La méthode analytique et la méthode isotrope *FEM* donnent des résultats très proches, et ce pour toutes les familles de plans cristallographiques testées (*Tableau III-10*). Cela montre que la solution analytique donne des résultats satisfaisants pour les géométries d'éprouvettes utilisées. De plus, l'influence de la matière qui supporte la base des éprouvettes est donc faible dans les configurations appliquées, où la distance entre la base et l'entaille est de l'ordre de 30% de la longueur de la poutre.

Brinckmann *et al.* [148] ont étudié numériquement l'influence de l'anisotropie élastique, montrant avec un modèle isotrope transverse que sur la plupart des matériaux, la différence entre un calcul isotrope et un calcul anisotrope est inférieure à 5%. Le matériau utilisé dans la présente étude a une structure cubique, et donc un comportement élastique anisotrope, de type orthotrope. Dans le but de quantifier cet effet d'anisotropie sur le calcul de ténacité, un modèle *FEM* orthotrope a été utilisé. Les résultats ne montrent pas de différence significative avec les valeurs calculées par un modèle isotrope (*Tableau III-10*). Cela confirme donc les conclusions de Brinckmann *et al.* [148], mais sur un système cubique.

■ Comparaison avec la littérature

Les propriétés en rupture de la zircone 8Y-FSZ et 10Y-FSZ ont été mesurées à de nombreuses reprises à l'échelle macroscopique (*Tableau III-1*). La ténacité est bien documentée pour la zircone polycristalline, mais l'est beaucoup moins pour des monocristaux orientés : la plupart des mesures sont issues de l'indentation, aucune publication n'a comparé les trois familles de plans avec la même méthode de mesure et seulement quelques éprouvettes ont été testées par *SENB* (*partie III-1.2*).

Les résultats obtenus par flexion de micro-éprouvettes entaillées dans des grains, en moyenne 1,50 MPa.m^{0,5} (*Tableau III-10*), sont dans la même gamme de valeurs que ceux obtenus par des essais *SENB* macroscopiques de la littérature (*Tableau III-3*), entre 1,5 MPa.m^{0,5} et 2,0 MPa.m^{0,5}. Pour les essais orientés dans un cristal, la littérature donne 1,3-1,9 MPa.m^{0,5} dans les plans {100}, 0,84-1,48 MPa.m^{0,5} pour {110} et autour de 1,48 MPa.m^{0,5} pour {111}. Dans la présente étude, les résultats sont plutôt cohérents : 1,49 ± 0,13 MPa.m^{0,5}, 1,65 ± 0,04 MPa.m^{0,5} et 1,45 ± 0,14 MPa.m^{0,5}, pour respectivement {100}, {110} et {111}.

Par contre, aucune différence significative n'est relevée entre les différents plans, et même, la ténacité mesurée est légèrement plus élevée dans {110} que pour les autres familles. Pourtant, selon la littérature, ce plan devrait être moins résistant que {100}. De plus, dans un cristal de type fluorite, c'est le plan {111} qui est généralement le plus favorable au clivage [132].

Ainsi, même si les résultats obtenus sont en moyenne cohérents avec la littérature, l'ordre de ténacité des plans cristallins ne semble pas l'être. Plusieurs hypothèses peuvent être avancées pour expliquer cela, qui sont exposées par la suite.

- Influence du positionnement dans le grain

Une des explications pourrait être que les plans testés n'étaient pas parfaitement perpendiculaires à l'axe de la micro-poutre. Alors les entailles n'auraient pas été tout à fait dans le plan visé. Cela pourrait être entraîné par la combinaison de plusieurs incertitudes. La première vient de l'équipement : de grandes cartographies *EBS*D ont été réalisées et des mouvements d'inclinaison ont été faits pour passer l'échantillon de la configuration d'acquisition pour l'*EBS*D à la position de travail pour le *FIB*, amenant à un décalage angulaire entre 0,5° et 1°. Une erreur peut aussi s'introduire lors de l'interprétation des projections stéréographiques. Un plan perpendiculaire à la surface est sélectionné quand il est représenté par une ligne droite passant par l'origine du graphique. En pratique, il y a toujours un léger écart avec l'orientation visée, estimé entre 0° et 2° sur de nombreuses projections stéréographiques. Finalement, en combinant toutes ces erreurs, il est possible que le plan soit décalé de quelques degrés par rapport à l'orientation visée. De toute façon, ce plan n'est pas très éloigné du plan testé par l'entaille. Si c'est un plan préférentiel de clivage, la fissure aurait probablement déviée vers cette direction particulière. En effet, ce type de déviations lors d'essais de flexion de micro-éprouvettes entaillées a déjà été observé. Dans de l'alumine monocristalline [95] et du spinelle Mg_2AlO_4 [96], un essai dans un plan plus résistant amène à une déviation du plan de rupture, et un essai selon un plan plus faible entraîne une surface lisse et nette.

- Effet de fond d'entaille

La ténacité mesurée est connue pour croître avec le rayon de fond d'entaille. Dans ce travail, un courant ionique de 10 pA a été utilisé pour réaliser toutes les entailles, menant à un rayon de fond d'entaille ρ très faible et similaire sur toutes les éprouvettes. Cependant, le taux d'abrasion du matériau par le faisceau du *FIB* est influencé par l'orientation cristalline, et donc pourrait affecter la forme du fond de l'entaille selon l'orientation testée. Pourtant, aucune différence de rayon de fond d'entaille n'a été notée entre les orientations cristallines dans cette étude, la différence étant soit inexistante, soit trop faible pour être observée au MEB.

Des coupes transverses au *FIB* ont permis de mesurer approximativement ce rayon au MEB, qui se situe entre 10 nm et 20 nm (*Figure III-51*). Ce résultat est cohérent avec des mesures effectuées par d'autres auteurs avec un courant de 10 pA : Norton *et al.* [95] ont mesuré 15 nm sur de l'alumine, et Best. *et al.* [106] ont trouvé entre 15 nm and 25 nm sur du CrN. Il a été montré qu'une entaille émoussée entraîne une surestimation de la ténacité[96]. Cependant, pour un ρ de moins de 20 nm, l'erreur induite est relativement faible, de l'ordre de 10% sur de l'alumine [95] et du CrN [105]. La méthode de correction de la ténacité introduite par Picard *et al.* [102] (*partie II-3.4*) a également été utilisée ici. En utilisant une contrainte à rupture de $2,58 \pm 0,85$ GPa (*Tableau III-9*), le facteur de correction qui en ressort est de 0,96.

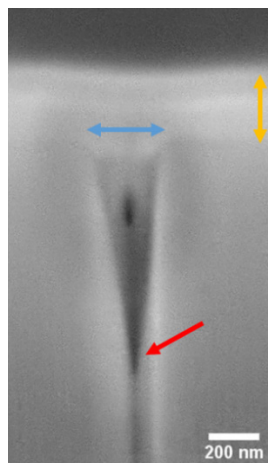


Figure III-51 : Image MEB de la coupe transverse d'une entaille réalisée à 10 pA au *FIB*. Flèche jaune : l'épaisseur de platine déposée pour protéger la surface et réaliser la coupe transverse au *FIB*. Flèche bleue : la largeur apparente de l'entaille. Flèche rouge : le fond d'entaille.

Finalement, le rayon de fond d'entaille a un effet sur la mesure de ténacité, mais qui semble négligeable ici. De plus, chaque micro-éprouvette a été fabriquée dans les mêmes conditions d'usinage au *FIB*, et même si il y a une erreur induite, la ténacité devrait être comparable d'un plan cristallin à un autre.

- Effet des dégâts des ions

L'effet de l'implantation ionique sur la ténacité est encore mal connu (*partie II-3.4*). Jaya *et al.* [69] ont montré que sur du silicium monocristallin, il n'y a pas d'influence significative de l'implantation ionique. D'un autre côté, d'autres auteurs ont relevé une forte influence de celle-ci, sur des revêtements polycristallins de CrN [105] ou sur des monocristaux d' Al_2O_3 [95]. Dans ce dernier cas, les auteurs expliquent cela par la création de contraintes résiduelles dans le matériau à cause des ions gallium implantés. Dans ce travail, ces contraintes résiduelles pourraient moyenner les mesures entre les différents plans cristallins. De plus, les ions sont connus pour être canalisés le long de certains plans cristallins quand l'échantillon est favorablement orienté, allant ainsi plus profondément dans le matériau [153]. Ce phénomène pourrait alors implanter davantage d'ions et/ou plus profondément selon certaines orientations, et donc modifier la ténacité mesurée.

- Entaille chevron

Les résultats des calculs faisant l'hypothèse d'une propagation stable de fissure dans l'entaille chevron entraînent une grande dispersion de ténacité. De plus, le fait de ne trouver aucune preuve de propagation stable de la fissure engendre une méfiance supplémentaire vis-à-vis de ces résultats.

Par analogie avec les essais macroscopiques sur entaille chevron (*partie II-2.2.2*), il semblerait que le critère d'arrêt de la fissure ne soit pas atteint, entraînant la ruine complète des micro-éprouvettes sans propagation stable de fissure. Pour réduire cet effet, la diminution du rayon de fond d'entaille de l'éprouvette pourrait être un facteur d'amélioration.

Mueller *et al.* [85] constatent une inflexion des courbes force-déplacement pour des charges égales à environ 80% de la force à rupture. Cette inflexion est douce dans le cas du quartz amorphe, et avec des paliers pour une alumine aux grains nanoscopiques qui présente un faciès de rupture intergranulaire. Par contre, les mêmes auteurs ont rencontré des problèmes pour appliquer cette méthode à un monocristal de silicium [149], où aucune propagation stable de fissure n'a pu être générée. Dans les deux premiers cas, la microstructure est peu sensible à la rupture par clivage : la silice est amorphe, et l'alumine à des grains nanoscopiques. Par contre pour le silicium monocristallin, et dans le cas de la présente étude, les grains de zircone cubique, le matériau rompt par clivage. Ce mode de rupture pourrait donc être une explication de la difficulté à générer une propagation stable de fissure.

La conclusion de ces essais est que pour ce type d'entaille, la propagation stable de fissure est probablement dépendante du matériau testé. Ainsi pour des grains de *8Y-FSZ*, le protocole d'essais doit être modifié et optimisé.

- Résistance croissante à la propagation de fissures

Les effets de résistance croissante de propagation de fissures doivent être habituellement prises en compte dans l'étude de la rupture des céramiques (*partie II-2.4.1*). Par contre, dans le cadre de l'étude à l'échelle microscopique de la zircone cubique, aucune propagation contrôlée n'est observée, et donc a priori il n'y a pas d'effets liés à cette résistance à la propagation croissante. De plus, il n'y a pas de changement de phase sous contraintes pour la zircone cubique. De plus, il n'y a pas d'effet de frottements d'éléments de la microstructure : dans ce matériau les seuls éléments susceptibles de frotter sont les grains, mais au vu de l'échelle des essais, ce n'est pas le cas. Finalement, seule la plasticité en fond d'entaille pourrait gêner la propagation d'une fissure. Cet effet est très probablement présent en extrême pointe de fissure, mais semble très limité puisqu'aucune preuve de plasticité n'a pu être observée sur les courbes de flexion ou bien au MEB.

Ainsi, il est raisonnable de penser qu'il n'y pas ou très peu d'effet de résistance croissante à la propagation de fissures, et cet effet sera négligé par la suite.

▪ Croissante lente des fissures (SCG)

La zircone est une céramique sujette à la SCG à cause, notamment, de l'humidité ambiante. La plupart des essais ont été réalisés à l'air, et sont donc potentiellement soumis à cet effet. Cependant, quand ils ont été testés à l'air, les essais ont été réalisés avec une vitesse de sollicitation de $50 \mu\text{N.s}^{-1}$. A cette vitesse, Mueller et al. [85] ont estimé que l'effet de SCG est négligeable. D'un autre côté, selon Norton et al. [95], cet effet ne peut être négligé, et devrait être réalisé dans de l'huile pour éviter tout contact possible avec l'humidité de l'air.

Finalement, il est difficile de statuer sur une éventuelle croissante lente des fissures. Cependant, aucune déviation à la linéarité n'est détectée sur les courbes de flexion, laissant présager qu'il n'y a pas de propagation de fissure. De plus, par la suite, les essais sur combustible seront systématiquement réalisés sous vide, ce qui devrait, *a priori*, réduire fortement un éventuel effet de SCG.

III-3.6.3. Module de Young

Le calcul du module de Young par la mesure de la flèche et de la force appliquée lors d'un essai de flexion est éloigné des méthodes préconisées pour faire ce type de mesure. Cependant, c'est une donnée qui peut être intéressante et aucune éprouvette supplémentaire n'a besoin d'être fabriquée, puisque la routine de calcul peut s'appliquer sur n'importe quel essai de flexion de micro-éprouvettes.

Les résultats ont une dispersion très élevée, près de 30% de la valeur moyenne (Tableau III-11 : Résultats des calculs de modules de Young E , sur éprouvette entaillées usinées dans 8Y-FSZ, déterminés par la méthode des éléments finis. La valeur indiquée est la moyenne des mesures obtenues $\pm$ l'écart-type calculé sur ces mesures. Le module était un paramètre ajusté en comparant la flèche calculée numériquement et la flèche mesurée expérimentalement. Deux nano-indenters différents ont été utilisés pour obtenir ces résultats.

	Modules de Young E en fonction des plans cristallographiques testés (GPa)		
Méthode	{100}	{110}	{111}
FEM isotrope	179 ± 50	166 ± 10	141 ± 36
Théorique (III-16)	365	180	153
Nombre d'essais	4	3	7

). Cela n'est pas vraiment étonnant de par plusieurs raisons. Tout d'abord, le procédé peut entraîner plusieurs imprécisions, au niveau de la fabrication, de l'impact du faisceau ionique, de l'orientation par mesures EBSD, de la mesure des dimensions, ou bien de la détermination et de la correction de déplacement. Pour gagner en précision et réduire la dispersion, il faudrait éventuellement utiliser des méthodes plus poussées, comme le présentent Armstrong *et al.* [108] : flexion de la poutre sans rupture avec différents points d'application de la force, mesures à la décharge, rapport longueur sur hauteur de l'éprouvette supérieur à 6.

Les valeurs obtenues, rapportées à leur dispersion, sont peu différentes d'une direction à une autre. Les valeurs de 161 ± 2 GPa pour <110> et 141 ± 36 GPa pour <111> sont relativement proches des valeurs théoriques, qui sont respectivement de 180 GPa et 153 GPa. Cependant la valeur pour la direction <100> est très insatisfaisante, elle est de 179 ± 50 GPa contre 365 GPa pour la théorie, soit près de 2 fois plus faible.

Une explication pourrait provenir du fait que les poutres sont courtes, et donc qu'il y a une influence non négligeable du cisaillement [94]. Ce cisaillement est pris en compte dans la flèche calculée par la modélisation par éléments finis, cependant, afin d'avoir une itération du calcul sur un seul paramètre E , le modèle utilisé est isotrope et le module de Poisson est fixé à 0,3. Le module de Young est calculé par l'équation (III-16), ν étant le module de Poisson et $E_{<ijk>}$ le module de Young orienté.

$$\mu = 2 E_{<ijk>} (1 + \nu) \quad (\text{III-19})$$

Le cristal étant anisotrope, son module de cisaillement μ peut varier considérablement d'une orientation à une autre par rapport au module calculé par l'équation (III-19), ce qui pourrait en partie expliquer la mauvaise estimation du module de flexion pour la direction <100>. Un modèle anisotrope a donc été utilisé pour calculer

numériquement la flèche de chaque éprouvette. L'orientation cristalline de chaque éprouvette est entrée dans le logiciel grâce aux mesures *EBS*, et les coefficients élastiques ($C_{11} = 402$ GPa, $C_{22} = 95$ GPa et $C_{44} = 56$ GPa) sont également renseignés. Dans ce cas-là, la différence entre la flèche calculée et la flèche expérimentale (après correction de l'indentation) est très différente pour la direction $\langle 100 \rangle$, en moyenne de 74%, et est beaucoup plus faible pour les directions $\langle 110 \rangle$ et $\langle 111 \rangle$, en moyenne 9% et 23% respectivement (*Tableau III-12*). La prise en compte de l'anisotropie élastique dans le modèle numérique montre que donc cette anisotropie n'explique pas toute la différence avec le déplacement mesuré.

Tableau III-12 : Ecart moyens relatifs entre les déplacements mesurés par un modèle *FEM* anisotrope et mesurés expérimentalement après correction de l'indentation.

	Ecart moyen entre le déplacement calculé et le déplacement mesuré avec l'orientation testé		
Méthode	{100}	{110}	{111}
<i>FEM anisotrope</i>	74%	9%	23%
Nombre d'essais	4	3	7

Finalement, l'explication pour la mauvaise estimation du module dans la direction $\langle 100 \rangle$ n'est pour le moment pas claire. Une hypothèse pourrait éventuellement être donnée à propos de la correction d'indentation lors des essais. En effet, la flèche numériquement calculée par un modèle *FEM* anisotrope dans la direction $\langle 100 \rangle$ est d'environ 200 nm, contre 400-500 nm pour les deux autres directions étudiées, et pourtant les forces à rupture entre les différents essais sont comparables. Pour une même force, la pointe d'indentation pénètre donc probablement plus profondément une poutre plus rigide orientée dans $\langle 100 \rangle$ qu'une poutre dans $\langle 110 \rangle$ ou $\langle 111 \rangle$. Or la correction de cette indentation est réalisée de la même manière pour toutes les directions, en soustrayant le déplacement d'un essai d'indentation réalisé sur le matériau massif. Cette approximation sur la correction pourrait donc engendrer une erreur conséquente quand la flèche de la poutre est faible, comme pour la direction $\langle 100 \rangle$.

Pour réduire cette approximation, faire des micro-poutres plus longues permettrait de réduire la part de déplacement corrigé dans le déplacement brut mesuré, ce qui réduirait par conséquent l'erreur induite par la correction d'indentation, mais aussi par le cisaillement.

III-3.7. Bilan

Les travaux portant sur la flexion de micro-éprouvettes dans un matériau simulant le combustible nucléaire a pour principal objectif l'étude des différents paramètres de la méthode dans l'optique de l'appliquer ensuite à l' UO_2 irradié. Pour cela, la zircone cubique *8Y-FSZ* a été utilisée comme matériau modèle et les conclusions sont les suivantes :

- Protocole de fabrication des micro-éprouvettes au FIB
 - Il est possible d'orienter dans des directions cristallographiques les éprouvettes préparées dans un grain d'un matériau polycristallin.
 - Les entailles simples réalisées ont un fond plat, sans effet de sur-usinage et présentent un rayon de fond d'entaille très fin.
 - Lors de la préparation des éprouvettes, la redéposition de matière induite par le faisceau ionique a besoin d'être nettoyée par abrasion *FIB*. Il faut donc veiller à ce que cela ne modifie pas les proportions initialement visées de l'éprouvette.
 - L'entaille chevron est plus difficile à générer qu'une entaille simple, et le rayon de fond d'entaille formé plus important.

▪ Sollicitation et rupture des éprouvettes

- La sollicitation par un nano-indenteur est satisfaisante, que ce soit avec une pointe Berkovich ou une pointe *Cube Corner*. Pour les essais *in situ* au MEB, la *Cube Corner* est préférable, car elle est plus pointue et permet une meilleure visibilité de la surface de l'échantillon.
- Les faciès de rupture ainsi que les courbes force-déplacement confirment le caractère fragile de la zircone. Un changement dans la direction de la fissure doit être considéré pour éviter toute confusion lors de la mesure de la profondeur de fond d'entaille.
- La sollicitation d'éprouvettes avec entaille chevron n'est pas satisfaisante : aucun indice d'une propagation stable n'est observée sur les courbes ou sur les surfaces de rupture.

▪ Méthodes de calculs

- Pour les mesures de contraintes à rupture, l'encastrement non-idéal des éprouvettes non-entaillées entraîne un écart à la théorie des poutres. La modélisation par éléments finis prévoit une rupture un peu avant la base de la poutre, alors qu'expérimentalement, chaque éprouvette non-entaillée rompt sur sa base. La solution analytique est donc tout de même utilisée.
- Une analyse complète de l'essai de flexion d'éprouvettes entaillées a été effectuée en utilisant un modèle par éléments finis. Trois types de calcul de la ténacité ont été comparés, montrant que la solution analytique, la solution *FEM* isotrope et la solution *FEM* anisotrope donnent des résultats de ténacité K_{Ic} similaires pour le jeu de données de cette étude.

▪ Validation des résultats

- En moyenne, les ténacités mesurées sont cohérentes avec les données de la littérature, relevées à l'échelle macroscopique.
- Des mesures de ténacités ont été effectuées dans les plans {100}, {110} et {111} avec la même méthode de mesure. Aucune différence de résultats n'a été observée entre ces familles de plan, ce qui semble être contradictoire avec la littérature qui attendrait plutôt l'ordre : {100} > {110} > {111}. Cependant, peu de données ont été obtenues pas des essais conventionnels sur monocristaux de zircone dans la littérature. Ces résultats sont également peu cohérents avec l'étude d'indentation des monocristaux de 8Y-FSZ (*partie III-2*), qui mettait en avant une fissuration préférentielle des plans de type {110}.
- L'influence du faisceau ionique sur la mesure n'a pas pu être clairement identifiée, notamment à cause de l'échec de la mise en place de la méthode de l'entaille chevron. Cependant, comme les résultats générés sont cohérents avec ceux de la littérature, il est raisonnable de penser que le faisceau ionique a peu influencé ces essais. Sur ce matériau cependant, une hypothèse est faite sur les dégâts induits par les ions, qui pourraient être influencés par l'orientation cristalline, ce qui pourrait amener à un lissage des ténacités anisotropes.
- Les contraintes à rupture mesurées sont environ 10 fois plus élevées que celles mesurées macroscopiquement. Cet effet d'échelle observé est assez cohérent avec l'analyse de Weibull, qui prévoit une augmentation de la contrainte à rupture mesurée quand le volume sollicité diminue, expliqué par la probabilité plus faible de présence d'un défaut critique.
- Une méthode de calcul du module de Young E en flexion a été mise en place. Les résultats obtenus présentent un ordre de grandeur correct, mais ne sont pas cohérents avec les modules théoriques d'un cristal de zircone. L'une des raisons possibles serait la longueur trop courte de ces poutres qui pourrait induire des erreurs de mesures.

III-4. Conclusion

Une étude bibliographique a permis de choisir un matériau modèle adapté : la zircone cubique *8Y-FSZ*. Ses propriétés cristallographiques et mécaniques sont proches de celles du combustible UO_2 et sont relativement connues et répertoriées dans la littérature.

Les essais d'indentation sur poly- et monocristaux de *8Y-FSZ* ont montré que les fissures générées sont influencées par différents paramètres :

- La microstructure du matériau (joints de grains et porosités) semble réduire la taille des fissures. Pour s'affranchir de cet effet, travailler sur des monocristaux est évidemment une solution efficace, mais néanmoins non envisageable pour le combustible irradié. Une solution serait donc de réduire la charge d'indentation des essais sur polycristaux, de manière à inclure les empreintes et les fissures générées dans un seul grain. Cependant, il faut veiller à ne pas trop réduire la charge de façon à ne pas passer sous le seuil de fissuration.
- L'orientation cristallographique du matériau joue sur la forme et la taille des fissures induites par l'indentation. Cependant, son influence peut être facilement écartée en moyennant les résultats sur de nombreux essais dans un matériau polycristallin à l'orientation aléatoire de ses grains.
- Le mode de fissuration semble rarement suivre les géométries proposées dans les études théoriques. Ainsi il est recommandé de calibrer les résultats obtenus avec une autre méthode plus conventionnelle de mesure de ténacité (flexion sur éprouvettes entaillées).
- La pointe utilisée joue sur la forme des fissures obtenues. La pointe Berkovich semble générer une fissuration mieux définie pour des faibles charges, et sa symétrie permet de moyenner plus facilement les orientations cristallines dans le cas d'un essai sur un monocristal ou dans un grain. Par contre, pour solliciter des directions spécifiques, la pointe Vickers est plus adaptée.

L'étude de la méthode de flexion de micro-éprouvettes sur zircone cubique *8Y-FSZ* permet de dresser le protocole de mesure qui sera utilisé sur le matériau d'intérêt : le combustible UO_2 .

- La mesure de ténacité se fera par flexion de poutres avec entailles simples et droites. L'anisotropie élastique influence peu les résultats de ténacité. Les entailles chevrons seront abandonnées, car elles ne donnent pas de résultats satisfaisants sur le matériau modèle.
- La contrainte à rupture sera évaluée par flexion de micro-poutres non-entaillées, le protocole présenté donnant de bons résultats. Pour la calculer, l'utilisation de la solution analytique de la théorie des poutres est satisfaisante. De toute façon, cette grandeur est soumise à un effet d'échelle important, et donc les résultats doivent être comparés pour des éprouvettes de même volume.
- Les éprouvettes seront également orientées cristallographiquement. Ce type de mesure sur combustible est intéressant pour améliorer la compréhension des mécanismes locaux de rupture, mais aussi pour être confrontées aux modélisations numériques de rupture par clivage. Pour avoir une valeur moyenne, il est toujours possible de moyenner les orientations ou bien d'usiner des éprouvettes à l'orientation quelconque.
- Les poutres sur UO_2 seront plus longues que dans cette partie, ce qui est facilité sur combustible par une taille de grains plus importante. Cela pourrait également permettre d'améliorer les mesures de modules élastiques.

CHAPITRE IV

APPLICATION SUR MATERIAUX D'INTERÊTS : LE COMBUSTIBLE VIERGE ET LE COMBUSTIBLE IRRADIE

Ce chapitre présente la transposition des essais étudiés et développés sur zirconium au combustible vierge et irradié. Réaliser des essais mécaniques sur le combustible irradié est un défi technique, qui requiert de multiples précautions et des équipements de pointe à cause des difficultés liées à l'environnement nucléaire. Jusqu'à maintenant, seules les méthodes d'indentation permettaient d'évaluer ses propriétés à la rupture. Dans une première partie, une étude bibliographique des propriétés à la rupture de l' UO_2 avant et après irradiation est réalisée. Ensuite, une étude d'indentation Vickers préliminaire à cette thèse et portant sur des combustibles vierges et irradiés à différents taux, est décrite. Des résultats d'indentation Berkovich sont apportés pour enrichir les données disponibles. L'ensemble de résultats d'indentation est ensuite discuté, notamment vis-à-vis des résultats d'indentation générés sur la zirconium cubique. Puis, la méthode de flexion des micro-éprouvettes est appliquée au combustible. Dans un premier temps, c'est un combustible vierge qui est choisi, et ensuite, la méthode est appliquée à un combustible irradié. Deux grandeurs sont mesurées : la ténacité et la contrainte à rupture, de certains plans cristallins, mais aussi de joints de grains du combustible. Les résultats obtenus sont comparés à la littérature puis discutés. Une conclusion sur les apports et les limites de la méthode de micro-flexion appliquée au combustible est finalement proposée.

IV-1. Données de la littérature

L' UO_2 est un matériau très utilisé dans les réacteurs REP, ses propriétés ont donc été particulièrement étudiées. Cependant, après irradiation, le matériau devient délicat à manipuler et sa fracturation empêche tout essai mécanique macroscopique : il y a donc très peu de données expérimentales dans la littérature sur les propriétés en rupture après irradiation du combustible.

IV-1.1. Le combustible vierge

IV-1.1.1. Propriétés générales

▪ Le combustible UO_2 standard

Le combustible nucléaire standard, utilisé dans les réacteurs à eau pressurisée, prend la forme d'une pastille d'oxyde polycristallin UO_2 [3]. Ce matériau céramique a classiquement une densité relative élevée (porosité de l'ordre de 5%), et une taille de grain moyenne d'environ 10 μm . Il est noté UO_2^{st} (st pour standard) dans cette étude.

Il cristallise dans le système cubique à faces centrées de groupe d'espace $\text{Fm}\bar{3}\text{m}$, les ions U^{4+} formant un réseau cubique à faces centrées avec les ions O^{2-} dans les sites tétraédriques de celui-ci (Figure IV-1). Pour l' UO_2 stœchiométrique, le paramètre de maille est de 5,47 Å.

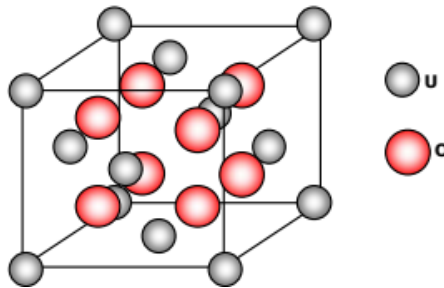


Figure IV-1 : Structure cristalline $\text{Fm}\bar{3}\text{m}$ de l' UO_2 [154].

L'élasticité macroscopique de l' UO_2 est isotrope et elle est décrite, à température ambiante, pour un combustible classique avec 5% de porosité, par [113]:

- Un module de Young $E = 194 \text{ GPa}$
- Un module de cisaillement $G = 70 \text{ GPa}$
- Un coefficient de Poisson $\nu = 0,30$

Ces valeurs sont dépendantes de la température et de la porosité du matériau, elle-même dépendante du taux de combustion. Martin *et al.* [155] proposent les relations d'ajustement suivantes (avec T la température en K, et p le taux de porosité, sans unité, et variant de 0 à 0,3) :

- $E = (2,27 \cdot 10^2 - 1,54 \cdot 10^{-2}T - 9,60 \cdot 10^{-6}T^2) (1 - 2,5p)$ (en GPa)
- $G = (85,83 - 5,16 \cdot 10^{-3}T - 3,75 \cdot 10^{-6}T^2) (1 - 2,25p)$ (en GPa)

L'élasticité à l'échelle cristalline est par contre anisotrope et elle est décrite par trois coefficients indépendants (géométrie cubique). Ces coefficients ont été mesurés notamment par mesures de la vitesse de propagation d'ondes sonores dans des monocristaux d' UO_2 [114] (coefficient d'anisotropie de Zener de 0,47) :

- $C_{11} = 396 \text{ GPa}$
- $C_{12} = 121 \text{ GPa}$
- $C_{44} = 64,1 \text{ GPa}$

▪ Le combustible UO_2 dopé au chrome

Des dopants, typiquement l'oxyde de chrome Cr_2O_3 , peuvent être ajoutés à la poudre avant frittage pour augmenter la taille des grains du matériau dans le but de réduire le relâchement de gaz de fission et l'interaction mécanique entre la pastille et la gaine [156]. Il présente une taille de grains moyenne de 60 μm et il est noté UO_2^{dc} dans ce travail (dc pour dopé au chrome). Le dopage au chrome modifie peu les propriétés du cristal d' UO_2 :

une grande partie du chrome est présent en solution solide et le paramètre de maille varie faiblement avec le dopage [156]. De même, ses modules élastiques peuvent être considérés comme identiques à un combustible standard UO_2^{st} .

Dans ce travail de thèse, il a été choisi d'utiliser de tels combustibles pour profiter de la taille élevée des grains pour mener des études mécaniques à l'intérieur des grains.

IV-1.1.2. Propriétés en rupture à l'échelle macroscopique

▪ Données de la littérature

Evans *et al.* [12] ont mesuré l'énergie de surface γ de l' UO_2 stœchiométrique par essais de flexion trois points. A température ambiante, la ténacité qui découle de la relation $K_{IC} = \sqrt{2 \gamma E}$ (II-19), avec un module E de 205 GPa (pour 3% de porosité) est d'environ $1,8 \pm 0,2 \text{ MPa.m}^{0,5}$ et $1,4 \pm 0,15 \text{ MPa.m}^{0,5}$ pour des échantillons avec une taille de grains moyenne de 8 μm et 25 μm respectivement. Kutty *et al.* [14] ont utilisé l'indentation Vickers, avec la formule d'Anstis (II-38), pour déterminer la ténacité polycristalline de l' UO_2 . Celle-ci dépend de la porosité et vaut environ $1 \text{ MPa.m}^{0,5}$ pour une porosité de 5%.

Pour la contrainte à rupture, des études ont montré qu'elle est dépendante du taux de porosité [20], mais aussi de sa distribution en taille [12]. Elle est de l'ordre de 120-160 MPa pour un taux de porosité d'environ 5% [20][12]. Elle dépend peu de la taille de grains, selon Oguma *et al.* [157], elle est d'environ 100 MPa pour une taille moyenne de 10 μm , contre 80 MPa pour une taille moyenne de 100 μm .

▪ Données CEA

Des essais réalisés au CEA permettent d'enrichir les résultats de la littérature [13]. Des barreaux de flexion aux dimensions standards ($28 \times 4 \times 4 \text{ mm}^3$), mais également des éprouvettes plus petites, dites « allumettes » ($10 \times 1,5 \times 1,5 \text{ mm}^3$), ont été usinées dans du combustible vierge. Deux types de mesures par flexion ont été effectués : des essais de contrainte à rupture ainsi que des essais de ténacité (éprouvettes entaillées à la scie diamantée). Deux types de combustibles ont été testés : un UO_2^{st} vierge à petits grains d'environ 10 μm , et un UO_2^{dc} vierge à grains d'en moyenne 60 μm .

Les valeurs de ténacité obtenues se situent entre $1,63 \text{ MPa.m}^{0,5}$ et $2,98 \text{ MPa.m}^{0,5}$ et ne sont pas significativement différentes d'un combustible à l'autre. Ces résultats ont un ordre de grandeur cohérent avec ceux de la littérature, compris entre $1,4 \text{ MPa.m}^{0,5}$ et $1,8 \text{ MPa.m}^{0,5}$, même si le faible nombre d'essais de flexion pousse à nuancer les résultats associés (Tableau IV-1).

Les contraintes à rupture obtenues, entre 100 MPa et 160 MPa, sont également en bon accord avec la littérature (Tableau IV-1). Peu d'éprouvettes ont été testées, mais il semblerait qu'il n'y ait aucune différence notable entre le combustible UO_2^{dc} à gros grains, et celui UO_2^{st} , à petits grains, pour une contrainte moyenne autour de 130 MPa.

Tableau IV-1 : Tableau récapitulatif des essais de flexion d'éprouvettes « barreaux » et d'éprouvettes « allumettes » sur combustible UO_2^{st} vierge à petits grains et UO_2^{dc} vierge à gros grains [13].

Echantillon	σ_R (MPa)	Nombre d'essais	K_{IC} ($\text{MPa.m}^{0,5}$)	Nombre d'essais
Barreaux, UO_2^{st} petits grains	126 - 144	2	2,08 – 2,16	1
Allumettes, UO_2^{st} petits grains	104 – 142	4	1,63 - 1,89	3
Barreaux, UO_2^{dc} , gros grains	108 - 120	2	1,8 - 2,18	2
Allumettes, UO_2^{dc} , gros grains	134 - 161	2	1,98 – 2,98	1

IV-1.1.3. Clivage de l' UO_2

L' UO_2 rompt de manière fragile, par clivage, jusqu'à environ 900°C [158], les faciès de rupture étant transgranulaires (Figure IV-2). Pour des températures plus élevées, le mode de rupture change et devient progressivement intergranulaire (Figure IV-2), la zone de transition se situant entre 900°C et 1400°C [159].

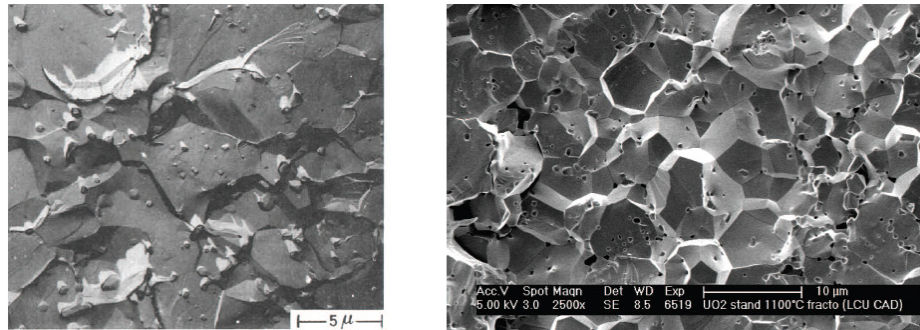


Figure IV-2 : Faciès de rupture en images MEB de l' UO_2 . (à gauche) Rupture transgranulaire [160] à 800°C ; (à droite) Rupture intergranulaire à 1200°C [161].

Des auteurs ont étudié le clivage de monocristaux d' UO_2 , ce qui met en évidence un clivage préférentiel des plans {111} [162][163], comme attendue dans une structure de type fluorite. Des estimations par des mesures expérimentales d'énergie de surface [164], mais aussi par des approches théoriques [165], trouvent également une énergie de surface plus faible pour {111} que pour les autres types de plans.

IV-1.1.4. Propriétés en rupture à l'échelle microscopique

Les essais de micromécanique, qui incluent les essais de traction, compression et flexion sur micro-éprouvettes, mais aussi les essais d'indentation instrumentée, sont particulièrement attractifs dans la communauté des matériaux du nucléaire [166]. La micromécanique permet en effet de tester des matériaux irradiés, que ce soit des irradiations modèles, aux ions ou aux neutrons, ou bien en réacteur industriel. Les irradiations aux ions n'affectent qu'une fine couche de matière en surface, testable uniquement par la micromécanique. Certains matériaux irradiés aux neutrons sont potentiellement irradiants, et donc difficile à manipuler. Cependant, la réduction de la taille des éprouvettes permet leur utilisation en abaissant les débits de doses par diminution du volume de matière.

D. Frazer, dans le cadre de sa thèse [167], a étudié les essais de flexion de micro-éprouvettes non-entaillées, réalisées dans de l' UO_2 vierge. Les échantillons utilisés présentent une forte densité de petites porosités, et les éprouvettes incluent donc des pores (Figure IV-3 - a). A température ambiante, l'auteur trouve une contrainte à rupture moyenne de $0,73 \pm 0,10$ GPa et un module de Young de flexion de 110 ± 62 GPa, pour des éprouvettes avec des petites ou peu de porosités, et $0,34 \pm 0,14$ GPa et $60,0 \pm 38$ GPa pour des éprouvettes avec des porosités de tailles plus importantes. Pour remédier à la dispersion induite par la porosité, l'auteur utilise ensuite des monocristaux denses d' UO_2 (Figure IV-3 - b). La surface supérieure de l'échantillon est un plan de type {111}, mais les poutres ne sont pas orientées préférentiellement selon des plans particuliers. La contrainte à rupture est de $3,26 \pm 0,53$ GPa, soit jusqu'à près de 5 fois plus élevée que pour les micro-éprouvettes qui présentent une porosité importante. Le module de Young mesuré est de 176 ± 28 GPa, contre un module théorique autour 185 GPa. La dispersion est donc plus faible que pour les échantillons avec des porosités et la valeur est plus cohérente avec la théorie.

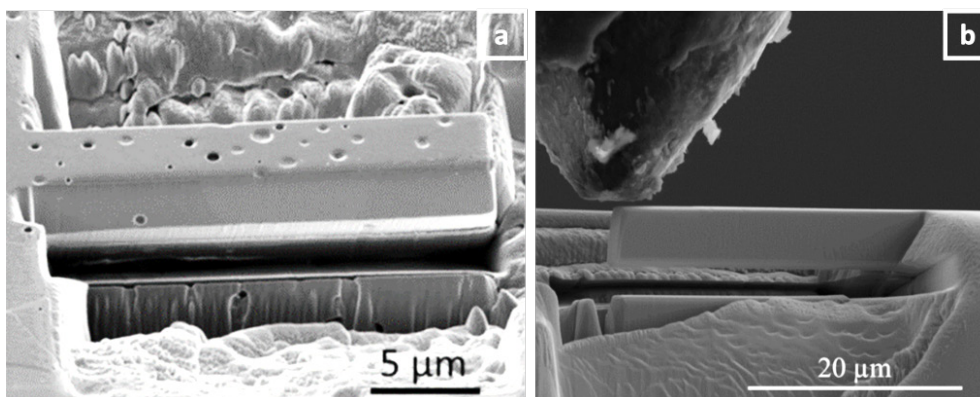


Figure IV-3 : Images MEB d'une micro-éprouvette de flexion réalisée dans de l' UO_2 vierge (a) : polycristallin, l'éprouvette inclut plusieurs porosités, (b) : monocristallin sans aucune porosité [167].

IV-1.1.5. Modélisation numérique à l'échelle de l'atome

Des techniques de simulations atomistiques, telles que la *MD* (*Molecular Dynamics*), la *DFT* (*Density Functional Theory*) ou bien la *TB* (*Tight Binding*), peuvent être utilisées pour modéliser la rupture de l' UO_2 . Ces calculs sont généralement réalisés avec des hypothèses simplificatrices (rupture dans le vide, chargements très rapides...), mais aussi dans des mono- ou bi-cristaux. Dans ces conditions, les énergies de surface γ_{ijk} peuvent être calculées pour chaque famille de plan $\{ijk\}$, mais aussi parfois pour des joints de grains spéciaux.

Les résultats peuvent varier considérablement selon la méthode ou les paramètres utilisés dans les calculs (*Tableau IV-2*). Dans les grains, les valeurs d'énergie se situent entre 0,5 et 3,0 J.m^{-2} et l'énergie de surface de $\{110\}$ est toujours supérieure à l'énergie de surface de $\{111\}$, quelle que soit la méthode de calcul employée. Ces valeurs sont cohérentes avec les énergies de surfaces mesurées expérimentalement [168], qui donnent en moyenne une valeur de 0,85 J.m^{-2} , mais sont plutôt éloignées des valeurs d'énergie de surface utilisées en mécanique, déterminée par flexion trois points, comprises entre $5 \pm 1,5 \text{ J.m}^{-2}$ et $8 \pm 2 \text{ J.m}^{-2}$ [12]. Les contraintes de clivage dans le grain ont été calculées par *DFT*. Elles sont d'environ 16 GPa pour le plan $\{111\}$ et de 28 GPa pour $\{110\}$. Ces contraintes de clivage calculées par des méthodes atomistiques sont donc beaucoup plus proches des contraintes à rupture issues des essais micromécaniques, surtout dans le cas où le matériau testé est monocristallin et sans porosité ($3,26 \pm 0,53 \text{ GPa}$ [167]), que de ceux générés par essais macroscopiques de flexion (environ 120 MPa [20]).

Des calculs ont été également faits sur des joints de grains spéciaux. Un joint de grains est défini par le niveau de désorientation entre les arrangements cristallins des deux grains. Il est dit spécial quand des sites du premier cristal coïncident avec des sites du second cristal sur la jonction entre les grains. Inversement, il est dit général ou quelconque, quand aucun ordre cristallin n'est conservé lors du passage d'un grain à un autre.

Pour des joints de grains spéciaux, les valeurs d'énergies de surface ne sont pas significativement différentes de celles des plans cristallins et se situent entre 0,8 J.m^{-2} et 3,5 J.m^{-2} . Des contraintes de clivage pour ce type de joints de grains ont été calculées par *MD*. Ces contraintes ne sont donc pas directement comparables aux valeurs des grains, puisque celles-ci ont été calculées par une autre méthode (*DFT*), mais il semblerait que les contraintes à rupture des joints de grains soient plus basses : entre 3,57 GPa et 8,85 GPa.

Tableau IV-2 : Energies de surface γ et contraintes de clivage, issues de la littérature, calculées par différentes méthodes, pour différents éléments d'un cristal d' UO_2 . Les éléments modélisés sont des plans cristallins de type $\{110\}$, $\{111\}$ et des joints de grains spéciaux $\Sigma 3$ et $\Sigma 5$. Pour les calculs de *MD*, une fourchette est donnée, car les valeurs calculées dépendent des potentiels empiriques utilisés.

Elément modélisé	Energie de surface γ (J.m^{-2})			Contrainte de clivage σ (GPa)	
	<i>MD</i> [169]	<i>DFT</i> [170]	<i>TB</i> [171]	<i>MD</i> [169]	<i>DFT</i> [172]
Plan $\{110\}$	[1,45 ; 2,80]	0,85	1,72	-	27,7
Plan $\{111\}$	[0,78 ; 1,88]	0,46	1,07	-	16,4
Joints de grain spéciaux	[0,79 ; 3,44]	-	-	[3,57 ; 8,85]	-

IV-1.2. Le combustible irradié

IV-1.2.1. Définition du taux de combustion [3]

Le combustible est utilisé au cours de différents cycles d'irradiation en réacteur. Un cycle est une période de fonctionnement entre deux rechargements successifs. Le taux de combustion, en GWj/tU , augmente avec le nombre de cycles et représente l'avancement de l'épuisement du combustible. Il s'exprime généralement par l'énergie qui a été fournie (en gigawatt-jour, GWj) par tonne de métal lourd initial (en tonne d'uranium, tU).

Le taux de combustion vu localement par le combustible dépend aussi de la position radiale dans la pastille. En effet, en périphérie de pastille, il se forme préférentiellement du plutonium 239 par capture de certains neutrons par des atomes, appelés fertiles, d'uranium 238. Le plutonium ainsi formé est fissile, et engendrera donc une plus forte concentration locale en produits de fission. Il en résulte, pour un taux de combustion moyen de la pastille supérieur à 40 GWj/tU , un taux de combustion local maximal en périphérie et croissant avec la position

radiale r , comprise entre $0 R$ (centre) et $1 R$ (périphérie), R étant le rayon de la pastille. Ainsi, deux types de taux de combustion sont utilisés ici pour décrire l'irradiation du combustible :

- Le taux moyen vu par une section de la pastille, qui est différent du taux moyen vu par le crayon. Dans ce travail de thèse, seulement le taux moyen de la section est utilisé.
- Le taux local de combustion. Jusqu'à quelques cycles, il est le même que le taux moyen dans la section. Après 40 GWj/tU, le taux de combustion local est croissant avec R à partir de $0,8 R$, et est bien plus importante en bordure. Cela implique que le taux local entre $0 R$ et $0,8 R$ est plus faible que le taux moyen, puis le dépasse largement pour des positions s'approchant de $1 R$.

Pour les combustibles avec un fort taux local en bord de pastille, la microstructure change et les grains se restructurent sous l'effet de l'irradiation. Ils deviennent très petits, environ $0,2 \mu\text{m}$, et les gaz de fission forment des bulles de rayon d'environ $0,6 \mu\text{m}$, qui représentent environ 10 % du volume. De nombreux précipités se forment aussi et se regroupent sur les joints de grains. Cette nouvelle structure est appelée *HBS*, pour « *High Burnup Structure* » [173]. Entre le combustible non-structuré au centre de la pastille et la zone *HBS*, pour des rayons compris approximativement entre $0,8 R$ et jusqu'à la *HBS*, il existe une zone intermédiaire, où des poches de combustible restructuré commencent à se former.

IV-1.2.2. Propriétés mécaniques après irradiation

Dans la littérature il y a très peu de données sur les propriétés mécaniques à la rupture du combustible après irradiation, que ce soit en réacteur expérimental ou industriel. Le seul essai réalisable jusqu'à récemment était l'indentation, particulièrement efficace pour mesurer des propriétés locales et les comparer entre différents combustibles ou différentes zones d'une pastille [174]. Spino *et al.* [175] ont réalisé des mesures de ténacité par indentation Vickers sur un combustible UO_2 avec un taux de combustion moyen de 40,3 GWj/tU sur tout le rayon de la pastille (Figure IV-4). La ténacité mesurée est entre de $1,0 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{0,5}$ et $1,7 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{0,5}$ pour des positions radiales r entre $0 R$ et $0,8 R$, diminue dans la zone intermédiaire entre $0,8 R$ et $0,93 R$, puis augmente ensuite dans la zone *HBS*.

K_{IC} est évalué par la formule (IV-1) proposée par Matzke *et al.* [174] :

$$K_{IC} = 0,057 H a^{0,5} \left(\frac{E}{H} \right)^{0,4} \left(\frac{c}{a} \right)^{-3/2} \quad (IV-1)$$

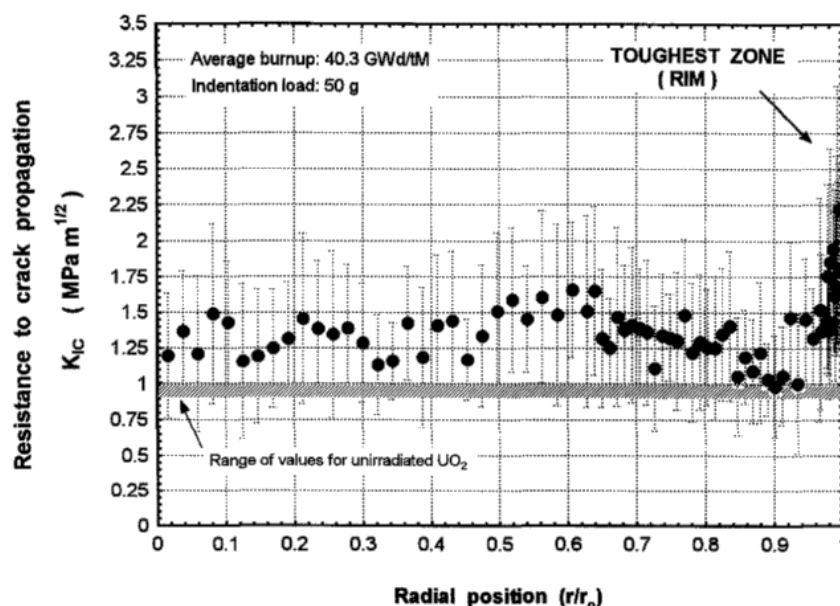


Figure IV-4 : Evolution de la ténacité du combustible avec la position radiale dans une pastille d' UO_2 après irradiation. Le taux de combustion moyen est de 40,3 GWj/tU, et le taux local dépend de la position radiale de l'essai. La formule (IV-1) utilisée est celle de Matzke *et al.* [174], en supposant un mode de fissuration « *Half-Penny* » [175].

IV-1.3. Bilan

La ténacité du combustible vierge, tirée de la littérature, varie considérablement d'une source à l'autre. La ténacité mesurée par *VIF* est d'environ $1,0 \text{ MPa.m}^{0,5}$ [14], contre entre $1,4 \text{ MPa.m}^{0,5}$ et $1,8 \text{ MPa.m}^{0,5}$, selon la microstructure du matériau, pour la ténacité déterminée par *SENB* [12]. La contrainte à rupture dépend beaucoup de la taille des défauts présents ; elle est comprise entre 100 MPa et 160 MPa, pour des essais macroscopiques réalisés sur un matériau polycristallin. A l'échelle microscopique, la valeur augmente largement : entre 0,34 GPa et 0,73 GPa quand il y a des porosités, et de plus de 3 GPa sur un monocristal dense. Avec les quelques essais disponibles qui comparent la résistance du combustible UO_2^{st} et du combustible UO_2^{dc} , il n'apparaît pas de différence significative, il faudrait cependant faire des essais complémentaires pour confirmer cela.

Par contre, très peu de données sont disponibles sur les propriétés en rupture du combustible irradié. Seule la ténacité a été évaluée par *VIF*, donnant un résultat moyen autour de $1,3 \text{ MPa.m}^{0,5}$ pour des positions radiales inférieures à $0,8 R$, puis des valeurs nettement plus élevées, jusqu'à $2,5 \text{ MPa.m}^{0,5}$ dans le combustible restructuré sous forme *HBS*, en périphérie.

La modélisation numérique de la rupture, mais aussi des observations expérimentales, semblent montrer un clivage préférentiel des plans {111}. Cependant, il est difficile de conclure sur la résistance relative des autres types de plans ou bien des joints de grains, même si la modélisation numérique semble prévoir que la contrainte à rupture des joints de grains est plus faible que les grains.

IV-2. Indentation

Des essais d'indentation Vickers à 735 mN sur différents combustibles, à différents taux de combustion et sur différentes zones des pastilles ont été réalisés au CEA, principalement par I. Zacharie-Aubrun [176]. Ces résultats seront décrits et discutés au vis-à-vis des conclusions obtenues sur le matériau modèle (*partie II-2.3*). De plus, afin de compléter l'étude d'indentation Vickers, des essais préliminaires d'indentation Berkovich ont été réalisés dans le cadre de cette thèse.

IV-2.1. Résultats d'indentation Vickers

IV-2.1.1. Matériaux et méthodes

L'étude a porté sur la mesure de propriétés mécaniques, à température ambiante, par indentation Vickers. Les méthodes utilisées sont décrites par une norme pour la mesure de dureté [53], et par Matzke *et al.* [174] pour le tri et la sélection des empreintes d'indentation en fonction de la forme des fissures pour effectuer une mesure correcte de ténacité. De nombreux essais ont été réalisés sur différents échantillons afin d'évaluer l'influence du taux de combustion et de la microstructure du combustible utilisé. Chaque échantillon est un tronçon de combustible inclus dans sa gaine. Tout d'abord, ils ont été imprégnés sous vide avec une résine époxy. Ensuite ils ont été abrasés pour les rendre plan, puis poli mécaniquement par des suspensions diamantées jusqu'à une granulométrie de 1 μm . Finalement un polissage de finition a été appliquée avec une solution colloïdale de silice de granulométrie 0,04 μm .

La force, appliquée par un micro-duromètre (Anton-Parr, Graz, Autriche) à l'air libre, est toujours de 735 mN. La mesure de l'aire de l'empreinte et de la taille des fissures s'est faite avec un microscope optique implanté dans une cellule blindée (Olympus, Tokyo, Japon). Pour chaque position radiale, environ 10 empreintes ont été réalisées. Près de 40% des essais ont été rebutés parce que les fissures générées autour des empreintes avaient des formes trop éloignées de la théorie.

Deux types de combustible ont été utilisés, un UO_2^{st} et un UO_2^{dc} . A l'état vierge, c'est à dire avant irradiation, ils ont environ une taille moyenne de grains de respectivement 10 μm et 60 μm . Les échantillons irradiés ont été prélevés sur des combustibles qui proviennent de REP qui ont subi entre 1 et 7 cycles d'irradiation, soit un taux de combustion moyen allant jusqu'à 81,6 GWj/tU.

IV-2.1.2. Micrographies

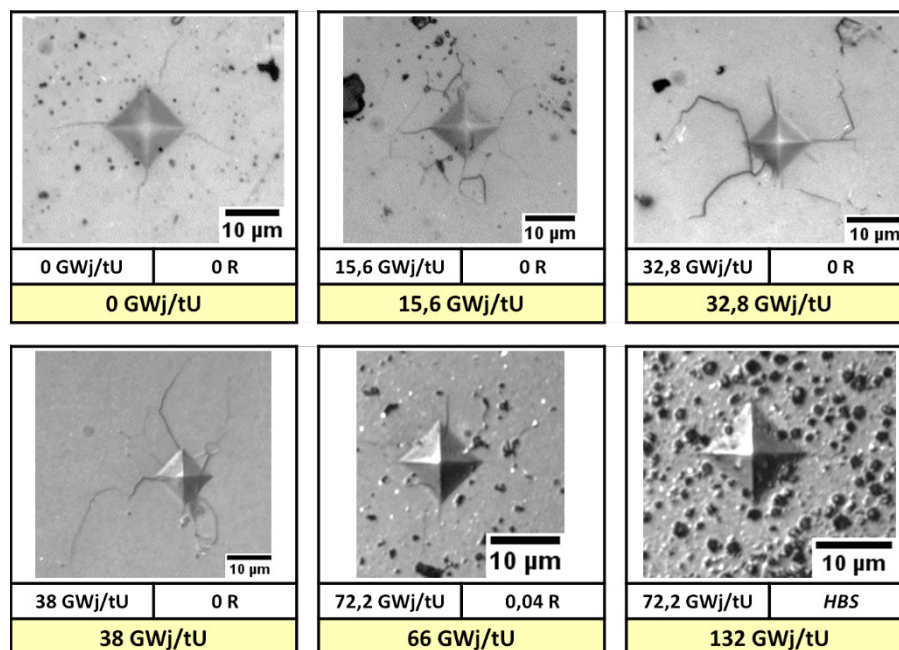


Figure IV-5 : Images MO d'empreintes Vickers réalisées à 735 mN sur un combustible UO_2^{st} , pour différents taux de combustion [176]. (Sur fond blanc) : le taux de combustion moyen de la pastille, et la position radiale de l'indent sur celle-ci. (Sur fond orange) : le taux de combustion local du combustible.

L' UO_2^{st} vierge présente des fissures relativement bien formées autour des empreintes Vickers (*Figure IV-5 – 0 GWj/tU*). Elles sont légèrement influencées par la porosité locale, mais la longueur des fissures peut être mesurée correctement. Après irradiation (*Figure IV-5 – 15,6/32,8/38/66 GWj/tU*), les fissures générées sont fortement influencées par les joints de grains. Leur morphologie s'éloigne alors beaucoup des formes théoriques, et aucune mesure convenable ne peut être obtenue. Quand le matériau s'est restructuré, en bord de pastille (*Figure IV-5 – 132 GWj/tU*), les fissures sont très courtes par rapport à la taille de l'empreinte, mais des mesures correctes peuvent être faites, malgré le fort taux de porosité et la présence de nombreux précipités.

Sur le combustible UO_2^{dc} , les fissures générées ont des formes beaucoup plus conformes à la théorie. Des mesures peuvent donc être systématiquement faites, que ce soit sur combustible vierge (*Figure IV-6 – 0 GWj/tU*), ou à différents taux de combustion (*Figure IV-6 – 16,5/34,1/58,2/60,4 GWj/tU*). Les joints de grains semblent aussi influencer fortement le trajet des fissures (*Figure IV-6 – 16,5 GWj/tU*) et quand une empreinte se trouve dessus, la mesure est écartée. Cependant, les grains étant en moyenne six fois plus gros sur ce combustible, l'interaction des fissures avec les joints de grains est plus rare. Les empreintes dans la HBS présentent également des fissures très courtes (*Figure IV-6 – 113 GWj/tU - HBS*). La microstructure de cette zone est semblable à la HBS de l' UO_2^{st} , avec des très petits grains, un fort taux de porosité et de nombreux précipités.

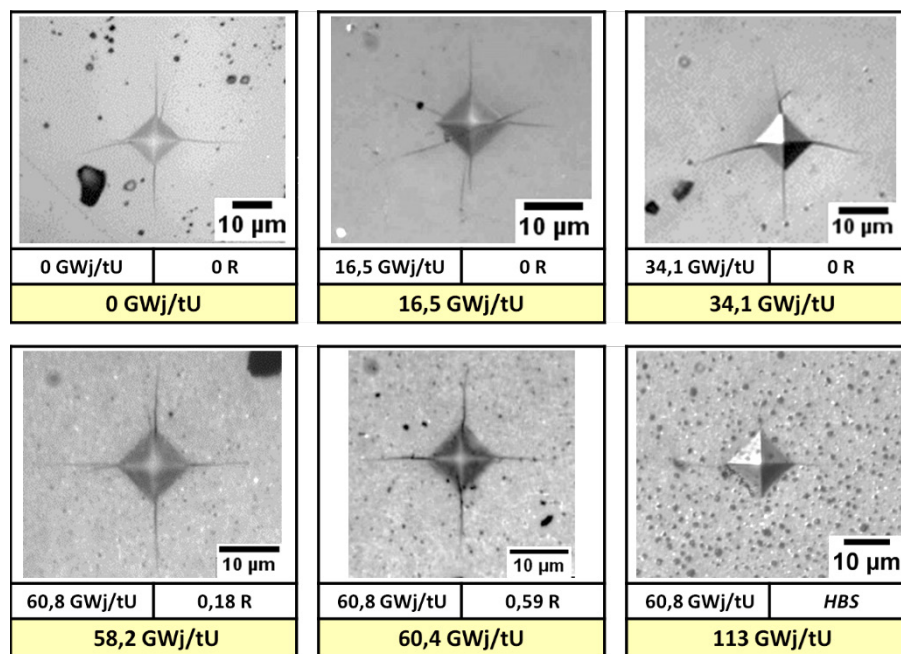


Figure IV-6 : Images MO d'empreintes Vickers réalisées à 735 mN sur un combustible UO_2^{dc} , pour différents taux de combustion [176]. (Sur fond blanc) : le taux de combustion moyen de la pastille, et la position radiale de l'indent sur celle-ci. (Sur fond orangé) : le taux de combustion local du combustible.

IV-2.1.3. Dureté

La dureté du combustible, calculée par le ratio charge appliquée sur l'aire projetée de l'empreinte mesurée au microscope optique, dépend de sa microstructure (*Figure IV-7*). Pour un UO_2^{st} non restructuré, la dureté sur le matériau vierge est de 7 GPa, puis augmente avec l'irradiation jusqu'à un palier d'environ 10 GPa après un taux de combustion de 20 GWj/tU. La tendance est la même pour un combustible UO_2^{dc} , mais avec des valeurs un peu plus élevées : 8,5 GPa sur vierge, puis un palier à 11 GPa. Quand le combustible se restructure, en périphérie de pastille et pour des forts taux de combustion, les duretés diminuent avec l'irradiation et les valeurs de dureté sont similaires pour les deux combustibles, soit entre 9 GPa et 7 GPa pour des taux de combustion locaux compris entre 80 GWj/tU et 130 GWj/tU.

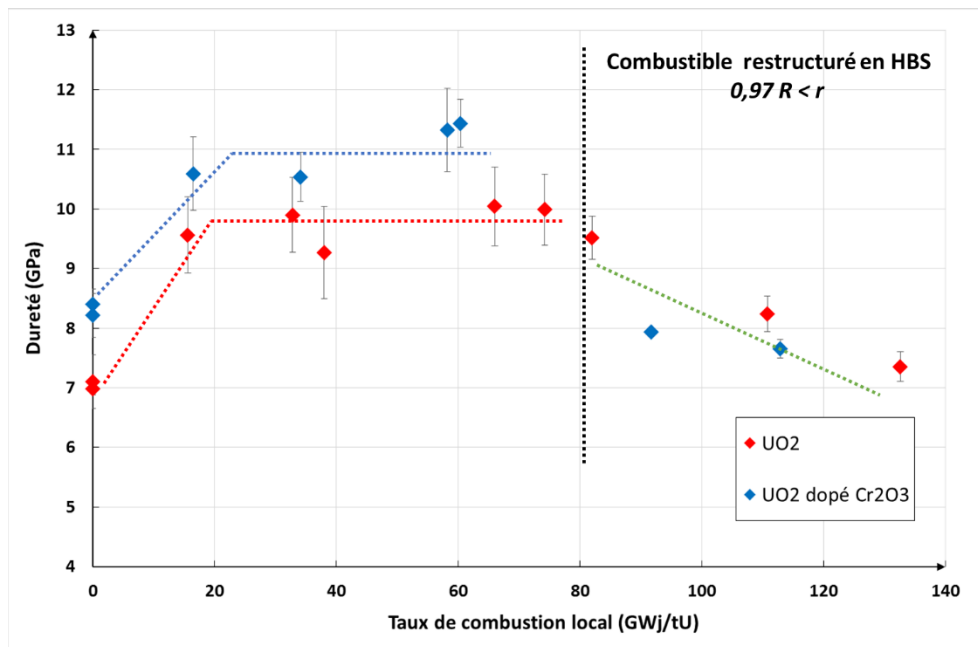


Figure IV-7 : Dureté Vickers mesurée par MO, pour une charge de 735 mN, en fonction du taux de combustion local. Deux types de combustibles sont testés, un UO₂st, à petits grains (10 μm), et un UO₂^{dc}, à gros grains (60 μm). Dans la zone HBS, où le combustible est restructuré, les microstructures des deux UO₂ deviennent similaires, c'est à dire avec des très petits grains et un fort taux de porosité.

IV-2.1.4. Ténacité

Sur matériau modèle, la zircone cubique, il avait été conclu que c'est la formule de Niihara (équation (II-40)) qui donne les résultats de K_{IC} par indentation Vickers les plus cohérents avec les essais de flexion macroscopiques (partie III-2.3). La gamme de charges appliquée à l'UO₂ étant proche, la ténacité a été calculée par cette équation (II-40) pour tous les essais, donnant ainsi des informations relatives entre les différents taux de combustion et les différentes microstructures (Figure IV-8). La dureté H provient de la mesure de l'empreinte mesurée au microscope optique pour chaque essai (Figure IV-8), et le module E est calculé par la formule de Martin *et al.* [155], en fonction de la porosité de l'échantillon.

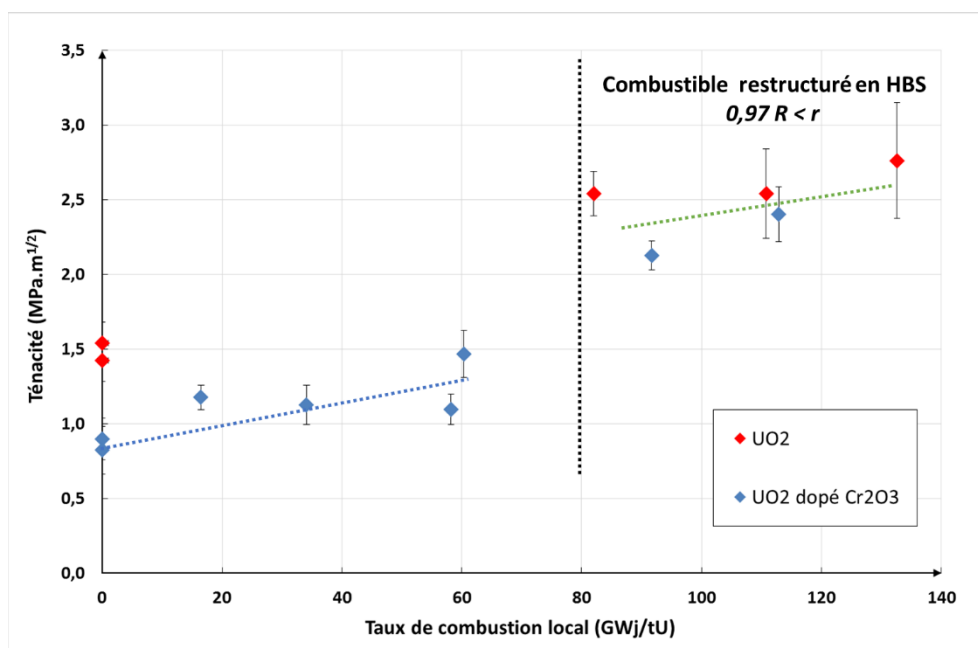


Figure IV-8 : Ténacité mesurée par longueur de fissures observées au MO, autour d'empreintes Vickers réalisées à 735 mN, et en fonction du taux de combustion local. K_{IC} est calculé par la formule de Niihara (équation (II-40)). Deux types de combustibles sont testés, un UO₂st, à petits grains (10 μm), et un UO₂^{dc}, à gros grains (60 μm). Dans la zone HBS, restructuré, les microstructures des deux UO₂ deviennent similaires, c'est à dire avec des très petits grains et un fort taux de porosité.

Sur combustible vierge, la ténacité est plus importante pour l' UO_2^{st} : $1,5 \text{ MPa.m}^{0,5}$, contre environ $0,8 \text{ MPa.m}^{0,5}$ pour l' UO_2^{dc} . Ensuite, pour l' UO_2^{dc} , la ténacité mesurée augmente avec l'irradiation, principalement parce que les fissures générées sont de moins en moins longues. Quand les combustibles sont restructurés en *HBS*, leur ténacité est très similaire, augmente avec l'irradiation et est beaucoup plus élevée que les valeurs sur vierge : entre $2 \text{ MPa.m}^{0,5}$ et $2,8 \text{ MPa.m}^{0,5}$.

Par indentation Vickers, les joints de grains semblent particulièrement propices à la fissuration, surtout après irradiation. Pour les combustibles irradiés et hors zone *HBS*, les joints de grains adjacents à l'empreinte s'ouvrent, ce qui crée des fissures en dehors des axes de l'empreinte. Dans ces cas-là, la mesure devient impossible quand le matériau a une taille de grain similaire ou inférieure au paramètre de fissuration c des empreintes. Dans les zones *HBS*, les grains sont de l'ordre du micron et il y a de nombreux joints de grains à proximité des indents. Pourtant, les fissures se forment et restent donc approximativement dans l'axe des empreintes, rendant acceptables les mesures de ténacité associées.

Pour pouvoir comparer les propriétés des combustibles UO_2^{st} et UO_2^{dc} irradiés, il faut donc s'affranchir de l'influence des joints de grains. Pour cela, une des solutions est de diminuer la taille des empreintes, et donc la charge appliquée. L'idéal étant de se placer dans un cas où le paramètre de fissuration c est bien inférieur à la taille d'un grain, il a été choisi de réaliser les premiers essais à faibles charges sur un combustible à gros grains : l' UO_2^{dc} .

IV-2.2. Résultats d'indentation Berkovich

La pointe Berkovich est généralement préférée pour l'application de faibles charges, en nano-indentation, notamment à cause de la difficulté d'usiner une pyramide parfaite à quatre faces dans un diamant. C'est pour cette raison que la pointe Berkovich est utilisée ici.

IV-2.2.1. Matériaux et méthodes

Pour ces essais, un système de nano-indentation NHT² (CSM Instrument, Peseux, Suisse) instrumenté et *in situ* à la chambre du MEB/FIB est utilisé. Les empreintes sont ensuite imagées avec le même MEB/FIB Auriga 40 (Carl Zeiss, Oberkochen, Allemagne).

Le matériau testé est un UO_2^{dc} , choisi pour ses gros grains et irradié en REP pendant deux cycles à un taux de combustion moyen de $34,1 \text{ GWj/tU}$. C'est un des échantillons testés par indentation Vickers (*Figure IV-6 – $34,1 \text{ GWj/tU}$*).

Les empreintes sont réalisées par visée au MEB, en évitant les joints de grains. Les charges, comprises entre 25 mN et 500 mN entraînent des paramètres de fissuration c compris entre 0 et $16 \mu\text{m}$ (*Tableau IV-3*), soit bien inférieurs à la taille moyenne des grains de $60 \mu\text{m}$.

Tableau IV-3 : Récapitulatif des essais Berkovich sur un combustible UO_2^{dc} irradié à un taux de combustion moyen de $34,1 \text{ GWj/tU}$. Pour chaque charge est donné le nombre d'essais réalisés, le nombre d'essais rebutés à cause d'une fissuration mal définie, et le nombre d'essais avec une fissure dans chaque coin. Les paramètres a et c ont été mesurés au MEB, et c est donné pour les essais présentant une fissure dans chaque coin.

Charge (mN)	Nombre d'empreintes	Nombre d'essais rebutés	Nombre d'essais avec 3 fissures en coin	a moyen (μm)	c moyen (μm)
25	6	0	0	1,3	-
50	8	1	3	1,9	3,6
75	11	1	4	2,3	5,0
100	9	0	9	2,7	6,5
300	10	3	7	4,8	11,8
400	8	3	5	5,6	14,31
500	8	5	3	6,3	16,0

Malgré les faibles charges utilisées et les gros grains du matériau, certaines empreintes sont à proximité d'un joint de grains et les fissures sont alors fortement influencées par celui-ci. Dans un tel cas, l'essai est rebuté (*Figure IV-9*). Le nombre d'essais écarté augmente avec la charge appliquée (*Tableau IV-3*), la probabilité d'être

influencé par un joint de grain étant plus grande, mais aussi parce que plusieurs essais présentent de l'écaillage et sont également rebutés (Figure IV-9 – 400mN).

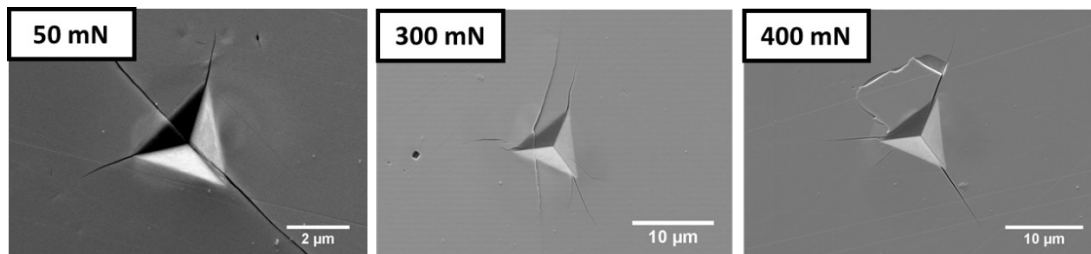


Figure IV-9 : Images MEB d'empreintes d'indentation Berkovich rebutées, réalisées sur un combustible UO_2^{dc} irradié à un taux de combustion moyen de 34,1 GWj/tU. Un essai sur un joint de grain entraîne l'ouverture du joint, et l'empreinte est donc écartée (image à 50 mN et à 300 mN). Pour des charges plus fortes, des écaillages sont parfois observés (image à 400mN).

IV-2.2.2. Micrographies

Pour la gamme de charges étudiée, allant de 25 mN à 500 mN, des fissures commencent à se former dans les coins à partir de 50 mN, elles sont systématiquement présentes dans les trois coins à partir de 100 mN, et elles interagissent souvent avec un joint de grains pour 500 mN (Tableau IV-3). Pour des charges entre 50 mN et 400 mN, les fissures sont la plupart du temps dans des configurations semblables aux cas théoriques, et peu influencées par la microstructure locale (Figure IV-10).

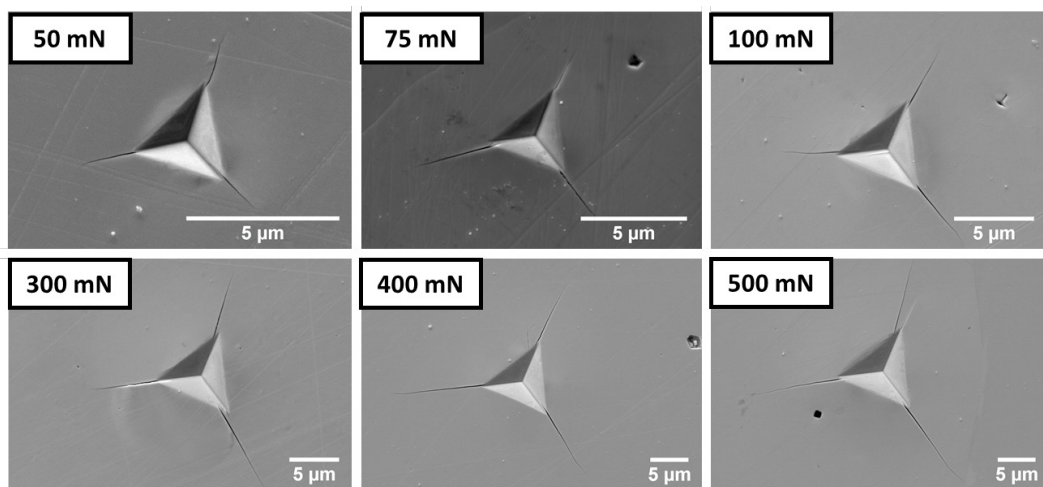


Figure IV-10 : Images MEB d'empreintes Berkovich, réalisées sur un combustible UO_2^{dc} irradié à un taux de combustion moyen de 34,1 GWj/tU, à différentes forces appliquées. Les essais sont réalisés à l'intérieur des grains afin d'éviter l'influence des joints de grains.

Une empreinte réalisée à 75 mN a été analysée par tomographie FIB (Figure IV-11). Elle montre que la morphologie des fissures sous l'empreinte est intermédiaire entre les deux modes « Palmqvist » et « Half-Penny » et qu'il y a également des fissures latérales. Pour cette charge, le ratio c/a est de 2,1. La morphologie de la fissuration est très similaire à celle déjà observée sur zircone polycristalline à une charge de 600 mN (partie III-1.3.3).

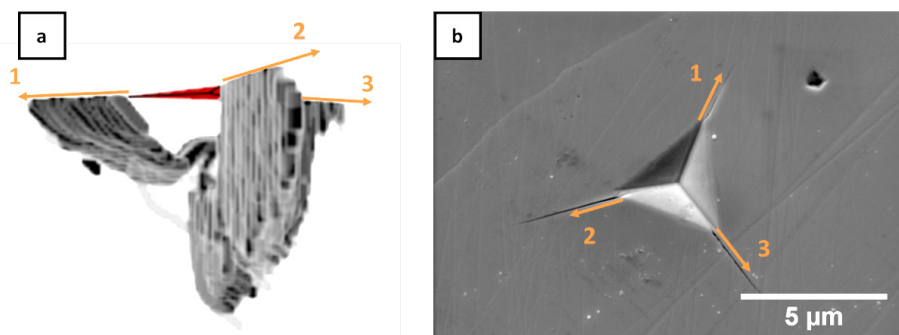


Figure IV-11 : (a) Image de reconstruction 3D issue de tomographie FIB d'une empreinte Berkovich réalisée à 75 mN et vue de côté. (b) Image MEB de l'empreinte associée, vue de dessus. L'échantillon est un UO_2^{dc} irradié à un taux de combustion moyen de 34,1 GWj/tU.

IV-2.2.3. Dureté

Les duretés mesurées diminuent de 11 GPa à 9,7 GPa pour des charges allant de 20 mN à 500 mN. Ces duretés sont plus faibles que la dureté obtenue par essais Vickers de 10,5 GPa sur le même matériau (*Figure IV-12*).

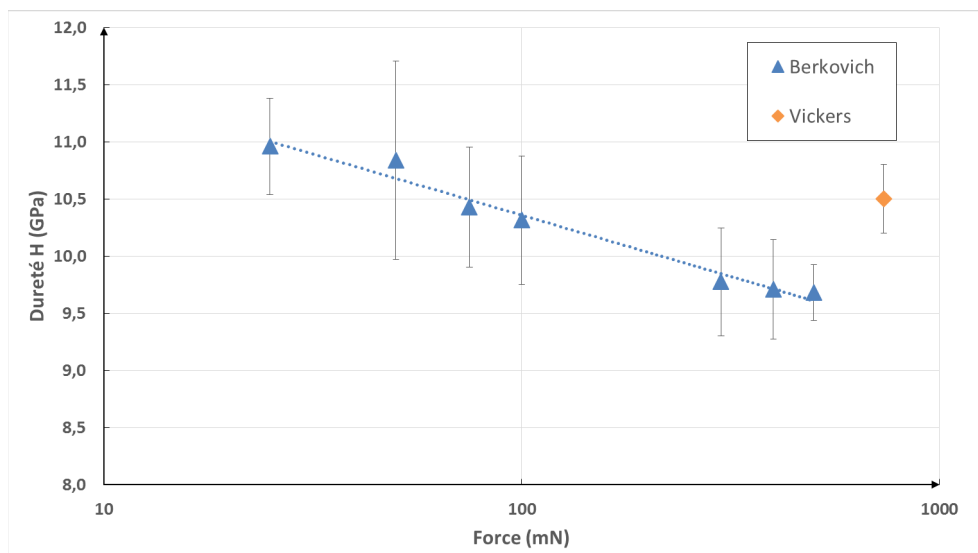


Figure IV-12 : Dureté H déterminée par mesures d'aire projetée des empreintes Berkovich et Vickers au MEB, en fonction de la charge appliquée sur combustible UO_2^{dc} irradié à un taux de combustion moyen de 34,1 GWj/tU.

IV-2.2.4. Ténacité

Il avait été montré que l'équation la plus adaptée pour mesurer la ténacité de la zircone cubique à partir d'un essai Berkovich (*partie III-2.2*) est la formule de Dukino (équation (III-2)). Elle est donc utilisée pour l'échantillon d' UO_2^{dc} (*Figure IV-13*). Pour les charges inférieures ou égales à 100 mN, le K_{IC} est décroissant avec la charge, puis atteint un palier autour de 0,8 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{0,5}$.

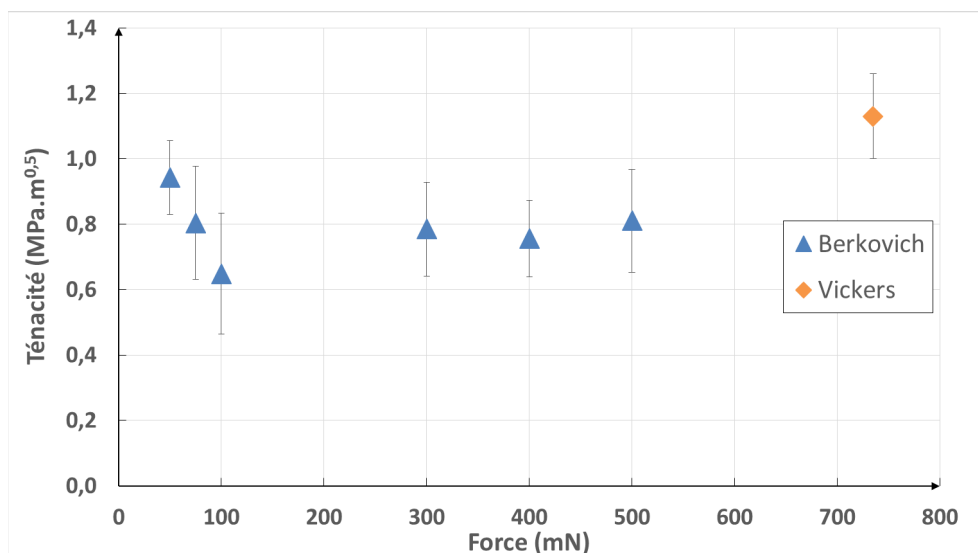


Figure IV-13 : Ténacité Berkovich et Vickers mesurée par longueur de fissures autour d'empreintes observées au MEB. K_{IC} est calculé par la formule de Dukino (équation (III-2)) pour la pointe Berkovich, et calculé par la formule de Niihara en mode « Half-Penny » (équation (II-40)) pour la pointe Vickers. Le K_{IC} est donné en fonction de la charge appliquée, sur un combustible UO_2^{dc} irradié à un taux de combustion moyen de 34,1 GWj/tU.

IV-2.3. Discussions

IV-2.3.1. Duretés Vickers et Berkovich

▪ Comparaison des pointes

La dureté H mesurée sur UO_2^{dc} est différente selon le type de pointe utilisée. Même si les essais ne sont pas réalisés sur la même gamme de force, la dureté Vickers semble être environ 1 GPa, soit 10%, au-dessus de la tendance de la dureté Berkovich (*Figure IV-12*). Que ce soit pour les essais d'indentation Vickers, réalisés à 735 mN, ou bien les essais Berkovich, réalisés entre 50 mN et 500 mN, les empreintes sont plus petites que la taille d'un grain d' UO_2^{dc} . L'influence des joints de grains ne peut donc pas être mise en cause. Pour la zircone cubique, les duretés étaient cohérentes entre les deux types de pointe (*Figure III-13* et *Figure III-23*). De plus, la pointe Berkovich a été spécifiquement développée pour avoir une aire de contact très similaire à la pointe Vickers. Ainsi la différence de dureté entre les deux cas ne devrait pas s'expliquer par un changement de pointe. Finalement, la seule différence conséquente entre les deux essais est l'utilisation d'un microscope optique pour les essais Vickers, contre un microscope électronique pour les essais Berkovich. Dans le cas du microscope optique, la mesure de l'aire de l'empreinte est probablement moins précise.

▪ Influence de la microstructure

En dehors des zones *HBS*, restructurées par l'irradiation, le combustible à gros grains UO_2^{dc} présente une dureté plus élevée que le combustible UO_2^{st} à plus petits grains, quel que soit le taux de combustion (*Figure IV-7*). Après restructuration, les microstructures des deux combustibles sont similaires, avec des grains de taille de l'ordre du micromètre ou moins et un grand nombre de petites porosités. Dans ce cas, la dureté est également similaire pour les deux matériaux.

Pourtant, sur la zircone *8Y-FSZ*, il avait été mis en avant que la dureté du monocristal est plus faible que celle du matériau polycristallin (*partie III-2*). Le combustible à gros grains serait assimilable à un monocristal, car toutes les empreintes Berkovich et la plupart des empreintes Vickers sont incluses dans un seul grain. Selon ces observations, il serait alors plutôt attendu que l' UO_2^{dc} ait une dureté H plus faible, ce qui n'est pas le cas.

Dans le cadre d'une autre étude, des essais Berkovich ont été réalisés sur un combustible UO_2^{st} vierge, à une charge de 40 mN. Cette force est suffisamment faible pour ne pas générer de fissure, et les essais ont laissé des traces de plasticité matérialisées par des lignes en surface autour des empreintes. Ces traces sont bien réparties autour de l'indent quand l'essai est réalisé au milieu d'un grain (*Figure IV-14 - a*), mais semblent être confinées par les joints de grains quand l'essai est réalisé en bord de grain (*Figure IV-14 - b*). Pour l'essai au milieu d'un grain, la dureté mesurée est de 5,06 GPa, contre 4,79 GPa pour le bord du grain : la différence est donc plutôt faible, inférieure à la dispersion des données (écart-type d'environ 0,5 GPa pour l' UO_2^{dc} à la même charge (*Figure IV-13*)). Ces observations semblent donc mettre en évidence une zone plastifiée autour de l'indent qui est perturbée par le joint de grains, alors que la dureté est peu influencée. Ces observations ne sont cependant que qualitatives.

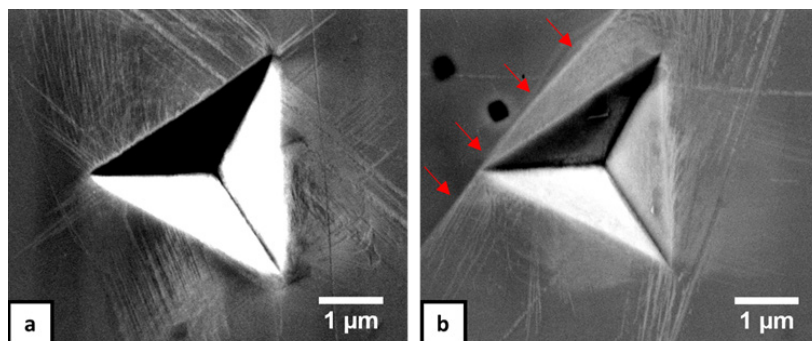


Figure IV-14 : Images MEB d'empreintes Berkovich réalisées à 40 mN sur UO_2^{st} et vierge. A cette charge, aucune fissure ne se forme, mais des indices de la plasticité sont visibles autour des empreintes. Ils prennent la forme de lignes en surface, qui sont probablement la trace de plans de glissement. (a) Essai dans un grain, les lignes sont bien réparties autour de l'empreinte. (b) Essai proche d'un joint de grains, les lignes semblent s'arrêter sur le joint de grains (pointé par des flèches rouges).

Finalement, la différence de dureté H entre l' UO_2^{st} et l' UO_2^{dc} est probablement due à la légère différence de composition de ces deux matériaux. Sur ZrO_2 , la comparaison de la dureté mesurée sur le monocristal de 8Y-FSZ donnait des valeurs plus basses que la dureté relevée dans la littérature sur un monocristal de 9,8Y-FSZ, qui présentait un plus fort taux de dopage en Y_2O_3 . Dans le cas du combustible UO_2^{dc} , la dureté plus importante que celle de l' UO_2^{st} pourrait également être expliquée par le dopage du matériau, cette fois par du Cr_2O_3 .

▪ Evolution avec l'irradiation

L'irradiation entraîne également l'ajout d'éléments dans le combustible, que ce soit en solution solide ou sous forme de précipités, qui pourrait donc certainement participer à l'augmentation de la dureté avec le taux de combustion observée pour des faibles taux (Figure IV-7). Ensuite, pour des combustibles non restructurés, un palier de dureté est atteint pour des taux de combustion moyens supérieurs à 30 GWj/tU : l'effet de durcissement par ajout d'éléments semble atteindre un seuil. Pour des combustibles restructurés, H chute ensuite avec le taux de combustion, très probablement à cause de l'augmentation forte de la porosité.

IV-2.3.2. Fissuration et évaluation de la ténacité

▪ Formules utilisées

La formule de Niihara (équation (II-40)) a été choisie à l'issue d'une calibration sur 8Y-FSZ par comparaison des essais Vickers avec des méthodes conventionnelles de mesures de ténacité (partie III-2.3). Les résultats obtenus sur combustible avec cette équation (Figure IV-8) ne peuvent être comparés à des essais SENB que pour un seul point de mesure : celui obtenu sur UO_2^{st} vierge. La valeur correspondante est de $1,45 \pm 0,1 \text{ MPa.m}^{0,5}$, qui est en bon accord avec les valeurs de $1,8 \pm 0,2 \text{ MPa.m}^{0,5}$ et $1,4 \pm 0,15 \text{ MPa.m}^{0,5}$ obtenues par Evans *et al.* [12]. Cela confirme donc la légitimité de la formule de Niihara utilisée.

Pour la formule de Dukino (équation (III-2)), la même démarche a été appliquée, c'est-à-dire qu'elle a été choisie par calibration des essais Berkovich sur la zircone cubique. Cependant, cette fois aucune donnée comparative de mesure de ténacité par une méthode conventionnelle n'est disponible sur l' UO_2^{dc} irradié à 34,1 GWj/tU. Il faut cependant noter une différence de tendances des ténacités mesurées en fonction de la charge appliquée sur cet échantillon. Entre 50 mN et 100 mN, les valeurs de ténacité sont décroissantes : entre $0,9 \text{ MPa.m}^{0,5}$ et $0,6 \text{ MPa.m}^{0,5}$, alors qu'elles semblent stabilisées autour de $0,8 \text{ MPa.m}^{0,5}$ pour des charges supérieures à 300 mN (Figure IV-13). Cette observation a déjà été faite sur la zircone cubique (partie III-2) et semble être induite par une fissuration mal définie pour ces faibles charges d'indentation.

▪ Influence de l'irradiation

A l'état vierge, la ténacité mesurée par indentation est plus élevée pour l' UO_2^{st} que pour l' UO_2^{dc} (Figure IV-8). Elle augmente progressivement avec le taux de combustion local pour l' UO_2^{dc} , alors que pour l' UO_2^{st} , les fissures sont trop influencées par la microstructure locale pour qu'une ténacité soit évaluée correctement. Il est donc possible de supposer que la ténacité intragranulaire de l' UO_2^{st} suit la même tendance, mais avec une valeur de ténacité plus élevée que pour l' UO_2^{dc} .

Après restructuration en HBS, les deux combustibles ont des ténacités comparables et qui augmentent avec le taux de combustion local. Cependant les valeurs sont nettement plus grandes : pour l' UO_2^{dc} la ténacité passe d'environ $0,9 \text{ MPa.m}^{0,5}$ à presque $1,5 \text{ MPa.m}^{0,5}$ pour un incrément de 60 GWj/tU avant restructuration, et vaut plus de $2 \text{ MPa.m}^{0,5}$ à un taux de combustion local de 85 GWj/tU. Ces résultats sont très similaires aux observations de Spino *et al.* [175] (Figure IV-4).

▪ Influence de la microstructure

La ténacité du combustible UO_2^{dc} vierge mesurée par indentation Vickers est inférieure à celle du combustible UO_2^{st} vierge (Figure IV-8) : dans ce cas, les défauts d'irradiation ne peuvent donc pas être mis en cause. Le dopage pourrait participer à cet effet, même si les essais de flexion macroscopiques ne permettent pas de noter une différence significative de la ténacité (Tableau IV-1). Une autre explication pourrait venir de l'influence des joints de grains : le combustible UO_2^{dc} à gros grains présente des fissures moins longues. Ces observations sont également cohérentes avec les tests réalisés sur zircone cubique (partie III-2), qui montraient que la présence de joints de grains semble augmenter la ténacité mesurée par indentation. D'ailleurs, les joints étant des zones qui

concentrent préférentiellement des porosités, par exemple des pores résiduels après frittage, il est difficile de dissocier l'influence spécifique du joint de grains de celle des pores.

L'étude de l'indentation d'un monocristal de zircon $8Y\text{-FSZ}$ suggère que lorsque l'empreinte est incluse dans un seul grain, plusieurs paramètres peuvent influencer les mesures (*partie III-2*). D'une part, l'orientation cristallographique peut changer le mode de fissuration. D'autre part, l'anisotropie élastique locale du grain pourrait jouer sur le mode de sollicitation engendré par l'indentation, celle-ci étant en partie caractérisée par le ratio E/H . E est anisotrope dans un cristal d' UO_2 , et même si H semble peu varier avec la présence d'un joint de grains, la zone plastifiée autour de l'indent semble bien y être sensible (*Figure IV-14*). Il n'est donc pas exclu que réaliser des essais d'indentation à l'échelle d'un grain génère une dispersion supplémentaire dans les mesures, induite par le fait que la matière à cette échelle est anisotrope et inhomogène. D'ailleurs, l'étude de tomographie *FIB*, réalisée sous une empreinte effectuée à 75 mN dans l' UO_2^{dc} irradié à 34,1 GWj/tU (*Figure IV-11*), montre que certaines fissures sous la surface sont dans un plan perpendiculaire à la surface : elles dévient de leur configuration théorique.

▪ Mesure de ténacité dans la zone HBS

Les fissures générées par indentation Vickers dans la zone *HBS* (*Figure IV-5 - HBS*, *Figure IV-6 - HBS*) sont différentes des autres zones, elles sont beaucoup plus courtes, ce qui serait donc synonyme d'une plus grande ténacité. Les valeurs de c/a sont également beaucoup plus faibles que pour les autres empreintes (*Figure IV-15*) et subissent une diminution constante avec le taux de combustion locale. La valeur de c/a est souvent utilisée comme critère d'utilisation de l'hypothèse de calcul sur la morphologie des fissures (*partie II-2.3*). Ce critère est peu fiable sur les matériaux de cette étude, car le ratio est proche de la valeur seuil, assez mal définie, comprise entre 2,5 et 3,5. Cependant, pour des ratios inférieurs à 2, la littérature est quasi-unanime : les fissures sont plutôt dans le mode « Palmqvist ».

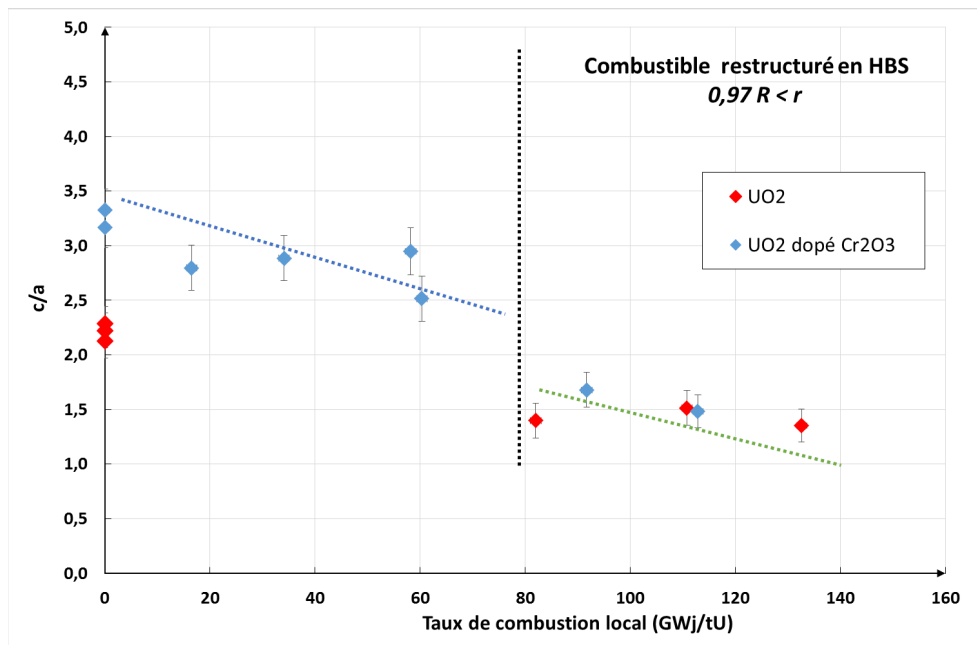


Figure IV-15 : Rapport c/a mesuré au MO sur des empreintes Vickers réalisées à 735 mN, en fonction du taux de combustion local. Deux types de combustibles sont testés, un UO_2^{st} , à petits grains (10 μm), et un UO_2^{dc} , à gros grains (60 μm).

La densité de défauts d'irradiation et de joints de grains augmente fortement dans la zone *HBS* et le ratio c/a devient particulièrement faible, jusqu'à 1. Dans ce cas, l'équation de Niihara pour le mode « Half-Penny » utilisée (équation (II-40)) n'est plus valable et il faudrait alors utiliser une équation adaptée à une morphologie de type « Palmqvist ». Cependant, la diminution de c/a se fait progressivement avec le taux de combustion local, et donc le changement de mode de fissuration n'est pas aussi brutal qu'un critère de c/a fixé à 2.

La transition d'un mode « Palmqvist » vers un mode « Half-Penny » est donc probablement progressive avec la charge. Pour être rigoureux avec l'utilisation d'une formule adaptée à la morphologie des fissures dans la zone

HBS, il faudrait idéalement calibrer les essais avec des essais standards, et donc macroscopique, sur un combustible restructuré. De par la taille de la zone *HBS*, c'est parfaitement impossible. Ainsi, tout ce qu'il est possible de dire, c'est que *a priori* l'équation (II-40) surestime la ténacité dans la zone *HBS* (Figure IV-4 et Figure IV-8), car elle fait l'hypothèse d'une fissuration différente de la fissuration réelle. Si l'équation de Niihara (II-41) pour le mode « Palmqvist » est appliquée aux combustibles restructurés, la tendance reste la même, c'est à dire une augmentation de la ténacité avec l'irradiation, mais les valeurs sont plus faibles en configuration « Palmqvist » qu'en configuration « Half-Penny » (Figure IV-16).

Dans la littérature, l'augmentation de la ténacité dans cette zone a été déjà discutée, notamment parce que le taux important de bulles devrait engendrer une diminution de la résistance du matériau [175]. Terrani *et al.* [177] donnent une hypothèse pour cette augmentation de ténacité : la restructuration entraine une ségrégation des défauts d'irradiation dans les joints, qui sont alors fragilisés. Les fissures d'indentation suivent ces interfaces, ce qui dissipe plus d'énergie qu'une rupture droite par clivage.

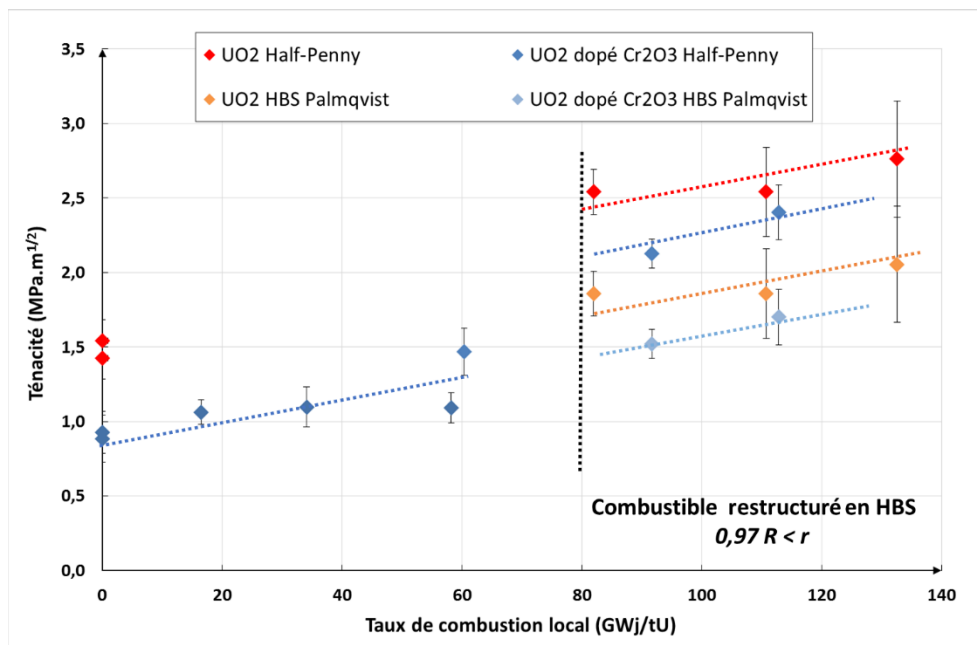


Figure IV-16 : Ténacité mesurée par longueur de fissures observées au MO, autour d'empreintes Vickers réalisées à 735 mN, et en fonction du taux de combustion local. Deux types de combustibles sont testés, un UO₂st, à petits grains (10 μ m), et un UO₂^{dc}, à gros grains (60 μ m). K_{IC} est calculé par la formule de Niihara développée pour une configuration « Half-Penny » (II-40). Dans la *HBS*, la ténacité est calculée par la formule de Niihara qui suppose une configuration « Palmqvist » (II-41).

▪ Fragilité apparente des joints de grains

Sur les combustibles vierges, les joints de grains ne semblent pas être une zone préférentielle de fissuration. Par contre, sur les combustibles irradiés à faible taux de combustion et jusqu'à 75 GWj/tU, les joints de grains s'ouvrent particulièrement autour des empreintes Vickers et les mesures de fissures sont impossibles (Figure IV-5). Pour le combustible UO₂^{dc}, les mesures sont réalisables, mais uniquement parce que les grains sont plus gros et donc qu'il y a moins de joints de grains sollicités lors de l'essai (Figure IV-6). Cette différence de comportement avec l'état initial du matériau semble mettre en avant une fragilisation des joints de grains qui apparait avec l'irradiation. Une des hypothèses serait la formation de défauts d'irradiation, tels que des bulles de gaz de fission, préférentiellement dans les joints de grains. Ils auraient alors une très petite taille, puisqu'ils ne sont pas visibles au microscope optique, et difficilement au MEB (Figure IV-9). Pour les zones périphériques *HBS* dans l'UO₂st et l'UO₂^{dc}, les mesures de fissures autour d'empreintes d'indentation sont également réalisables car ces fissures sont relativement droites. Les essais réalisés dans les zones *HBS* ont été imagé au microscope optique, et donc cette fois les grains sont trop petits pour qu'il soit possible de savoir si les joints de grains sont des zones préférentielles de fissuration.

Hors *HBS*, la diminution de la charge appliquée avec un pointe Berkovich sur le combustible UO₂^{dc} a montré que l'empreinte, mais aussi les fissures qui se forment autour, pouvaient être aisément incluses dans un grain. En

effet, le paramètre c , qui vaut jusqu'à 16 μm pour une charge de 500 mN, est bien inférieur à la taille de grain moyenne de 60 μm (*Tableau IV-3*).

Le but de ces essais préliminaires était de vérifier si l'essai Berkovich à faibles charges serait transposable à l' UO_2^{st} irradié, où les mesures ne sont pas réalisables à cause des joints de grains qui sont systématiquement sollicités pour une charge d'indentation de 735 mN. Pour espérer éviter l'influence d'un joint de grain dans le combustible UO_2^{st} , il faudrait donc générer un paramètre $2c$ inférieur à la taille de grain moyenne, de 10 μm . Selon le *Tableau IV-3*, obtenu sur UO_2^{dc} , la charge appliquée doit donc être de 75 mN ou moins. Cependant à ces charges, il ne se forme pas systématiquement une fissure dans chaque coin de l'empreinte. De plus, l' UO_2^{st} intragranulaire semble plus tenace que l' UO_2^{dc} (*Figure IV-8*) et donc il est probable qu'il n'y ait aucune fissure à cette charge, ou bien qu'elle soit dans un mode intermédiaire, comme observé aux faibles charges sur l' UO_2^{dc} irradié (*Figure IV-13*).

IV-2.4. Bilan

L'indentation était la seule méthode disponible, jusqu'à très récemment, pour mesurer des propriétés mécaniques des combustibles irradiés en REP, et donc pour estimer l'influence de l'irradiation sur ces propriétés. L'irradiation semble durcir le matériau, mais aussi augmenter sa ténacité, jusqu'à sa restructuration en zone *HBS*. Pour cette région périphérique, la porosité est tellement importante que la dureté, mais aussi la taille des fissures générées par indentation, diminuent nettement.

Les fissures formées dans les coins des empreintes d'indentation semblent également influencées par la microstructure locale. Sur combustible vierge, tout comme sur la zircone cubique, elles semblent raccourcir avec la présence de joints de grains. Sur les combustibles irradiés, les joints de grains semblent particulièrement propices à la fissuration lors des essais d'indentation, ce qui gêne l'interprétation des mesures. Une explication probable serait la formation préférentielle de défauts d'irradiation, comme des bulles pressurisées de gaz de fission, le long de ces joints de grains, fragilisant ainsi ces interfaces. Cependant, les essais d'indentation ne permettent pas d'évaluer quantitativement cette faiblesse. Des essais Berkovich préliminaires à faibles charges sur un UO_2^{dc} irradié montrent qu'il risque d'être difficile de faire des mesures de K_{IC} par cette méthode sur un UO_2^{st} irradié sans avoir l'influence des joints de grains, car les grains y sont trop petits.

IV-3. Flexion de micro-éprouvettes

L'application de la méthode de flexion de micro-éprouvettes au combustible s'est faite en deux étapes. Tout d'abord, la méthode a été appliquée sur un combustible standard UO_2^{st} vierge, puis à un combustible irradié UO_2^{dc} dopé au Cr_2O_3 .

IV-3.1. Matériaux et préparations

IV-3.1.1. Matériaux et préparation de surface

▪ Combustible UO_2^{st} vierge

Un échantillon de combustible UO_2^{st} vierge est utilisé : c'est un combustible standard, classiquement utilisé en REP. Sa porosité fermée mesurée par densité hydrostatique dans du bromobenzène est de 4,5%, tandis que sa porosité ouverte est négligeable. La taille de grain moyenne mesurée par une méthode des *intercept* est de 10,6 μm (Figure IV-19).

L'échantillon rectangulaire a été découpé dans une pastille d' UO_2^{st} (coupe longitudinale) à l'aide d'une scie à fil, puis collé sur un support par une cire thermofusible. Il a été poli successivement avec des papiers SiC jusqu'au grade P4000, puis par une suspension diamantée de granulométrie 1 μm . Finalement, une solution de silice colloïdale avec une taille de particules de 0,02 μm a été utilisée (Figure IV-17).

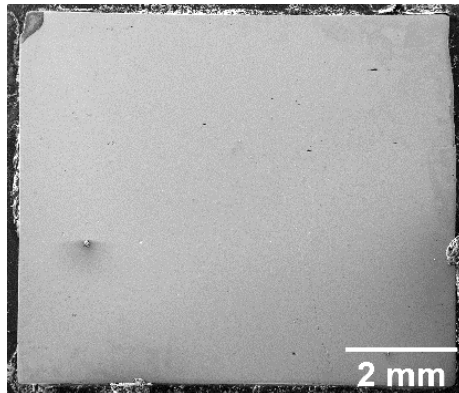


Figure IV-17 : Macrographie MEB d'un échantillon d' UO_2^{st} .

▪ Combustible UO_2^{dc} irradié

Le matériel d'indentation *in situ* au MEB/FIB nucléarisé présente un mode de fonctionnement atypique pour la flexion des micro-éprouvettes, qui est décrit ultérieurement (partie IV-3.3.1). De plus, au vu des études d'indentation Vickers préalablement réalisées sur combustible irradié, il a été montré que les joints de grains présentent une grande faiblesse. Ainsi, pour mettre en place et réaliser les premiers essais de micromécanique sur combustible irradié, il a été choisi de prendre un échantillon présentant des gros grains.

Un combustible non-standard a donc été sélectionné : il est dopé à l'oxyde de chrome Cr_2O_3 (noté UO_2^{dc}), ce qui permet d'augmenter considérablement la taille des grains durant le frittage : il présente une taille moyenne de grains de 60 μm (Figure IV-19). La porosité fermée de l'échantillon est 3,1% et il a subi une irradiation en réacteur à un taux de combustion moyen de 34,1 GWj/tU. C'est le même échantillon que celui utilisé dans la partie IV-2. Ayant subi une irradiation en REP, l'échantillon est fracturé (Figure IV-18). Les micro-éprouvettes doivent donc être préparées entre ses fissures. Tous les essais mécaniques ont été réalisés au centre de la pastille.

L'échantillon d' UO_2^{dc} irradié est un tronçon de combustible inclus dans sa gaine (Figure IV-18 - a). Il a d'abord été imprégné par une résine polyépoxyde, sous vide. Puis, une étape d'abrasion permet de rendre l'échantillon plan. Ensuite, il a été poli successivement par des papiers SiC, jusqu'à un grade P2400, puis par des suspensions diamantées de taille de particules allant de 6 μm à 1 μm . Pour l'étape de finition, une solution colloïdale de silice avec une taille de particules de 0,02 μm est utilisée. L' UO_2 étant un relativement bon conducteur électronique pour une céramique, aucun dépôt n'a besoin d'être appliqué pour l'utilisation au MEB/FIB ou même pour réaliser des cartographies EBSD. Le combustible étant irradié, toutes ces étapes sont réalisées en télémanipulation dans une cellule blindée.

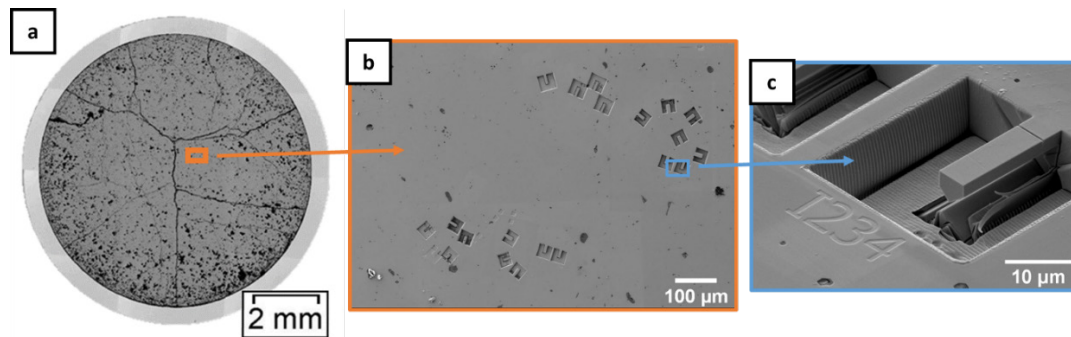


Figure IV-18 : Echantillon d' UO_2^{dc} irradié en REP à 34,1 GWj/tU. (a) Macrographie réalisée au MEB de la pastille entière. (b) Image MEB d'une zone où des micro-épreuves ont été préparées. (c) Image MEB d'une micro-épreuve de la zone (c). Les cadres de couleur ont une taille qui respecte l'échelle des différentes images.

Le dopage au chrome ne devrait pas, ou peu, modifier les propriétés à la rupture du combustible. En effet, au vu de la dispersion des données répertoriées dans (*Tableau IV-1*), aucune différence significative ne peut être relevée pour la ténacité ou la contrainte à rupture. Une petite différence de dureté est cependant notée par indentation Vickers à 735 mN, la dureté d'un combustible UO_2^{st} étant de 7 GPa, contre 8,5 GPa pour un combustible UO_2^{dp} vierge (*Figure IV-7*) [176].

IV-3.1.2. Préparation des éprouvettes

▪ *Cartographies d'orientation EBSD*

Les cartographies EBSD (*Figure IV-19*) ont été acquises avec une caméra Nordlys et le logiciel Aztec (Oxford Instruments, Abingdon-on-Thames, Royaume-Uni), avec une tension d'accélération des électrons de 20 kV, des pas de 1,35 μm ainsi qu'un regroupement de pixels de 2x2. Le taux d'acquisition obtenu est en moyenne de 96,1% pour l' UO_2^{st} vierge et de 98,8% pour l' UO_2^{dc} irradié.

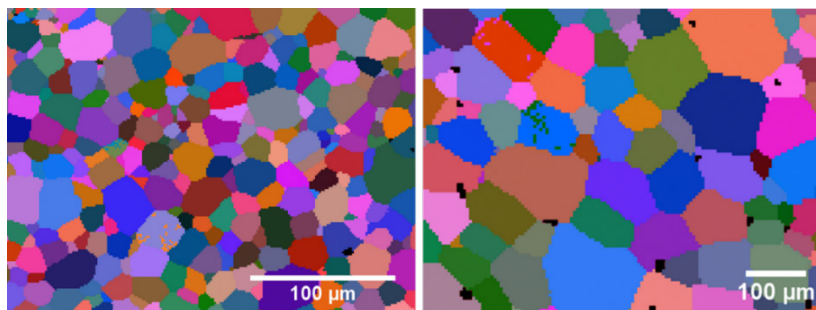


Figure IV-19 : Cartographies d'orientation EBSD de : (à gauche) l'échantillon UO_2^{st} vierge ; (à droite) : l'échantillon UO_2^{dc} irradié.

▪ *Fabrication des micro-épreuves*

Le protocole de fabrication des éprouvettes développé et optimisé sur zircon cubique a été utilisé pour réaliser les éprouvettes sur combustible (*partie III-3.2.3*). Le microscope à balayage double faisceau MEB/FIB utilisé est un modèle Auriga 40 (Carl Zeiss, Oberkochen, Allemagne), nucléarisé dans le but d'étudier des combustibles irradiés dans un laboratoire de haute activité. La tension d'accélération des ions utilisée est toujours de 30 kV.

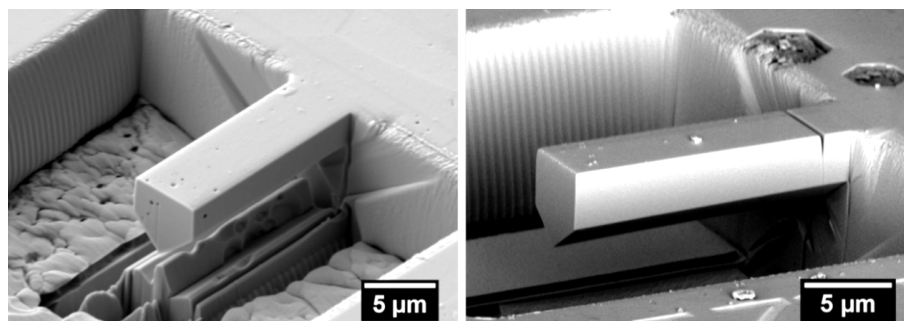


Figure IV-20 : Micro-épreuves obtenues après usinage FIB : (à gauche) : micro-épreuve non-entaillée dans UO_2^{st} vierge ; (à droite) : micro-épreuve entaillée dans UO_2^{dc} irradié à 34,1 GWj/tU.

Les éprouvettes fabriquées sont orientées cristallographiquement grâce à des cartographies *EBSD*. Deux types d'éprouvettes sont utilisés : des éprouvettes de ténacité avec une entaille simple et droite (la forme de chevron n'ayant pas donné de résultats satisfaisants sur ZrO_2) et des éprouvettes non-entaillées pour des mesures de contraintes à rupture (*Figure IV-20*). Au vu des conclusions tirées de la mise en place des essais sur zircon, il a été choisi de fabriquer des poutres plus longues que celles fabriquées dans ZrO_2 : entre 15 μm et 22 μm , pour une section pentagonale d'environ 5 x 5 μm^2 .

▪ *Eprouvettes pour solliciter des joints de grains*

La connaissance des propriétés mécaniques des joints de grains de combustible est particulièrement intéressante et donc des éprouvettes ont été préparées dans le but de tester leur résistance. Pour cela, il faut trouver des joints de grains qui sont rectilignes sur une distance d'au moins quelques microns, de manière à fabriquer une éprouvette dessus. De plus, ce joint doit être à peu près perpendiculaire à la surface de l'échantillon, de manière à l'être également par rapport à l'axe long de la future éprouvette.

Les cartographies d'orientation *EBSD* permettent de trouver des joints qui sont localement rectilignes, mais ne permettent pas d'obtenir des informations sur leur orientation perpendiculairement à la surface supérieure de l'échantillon. Ainsi, pour trouver des joints normaux à la surface, il faut excaver de la matière au *FIB* de part et d'autre de la future poutre (*Figure IV-21*). Les surfaces ainsi générées peuvent être polies avec un courant ionique de 300 pA afin de mieux révéler le joint de grains. L'utilisation d'une imagerie ionique peut également aider à le repérer grâce au contraste de canalisation des ions.

Les joints de grains étant rarement normaux à la surface, seulement 25% des excavations ainsi générées sont par la suite utilisées pour fabriquer une éprouvette. Les étapes d'excavation des joints de grains sont donc réalisées durant la nuit de manière autonome avec le MEB/*FIB*.

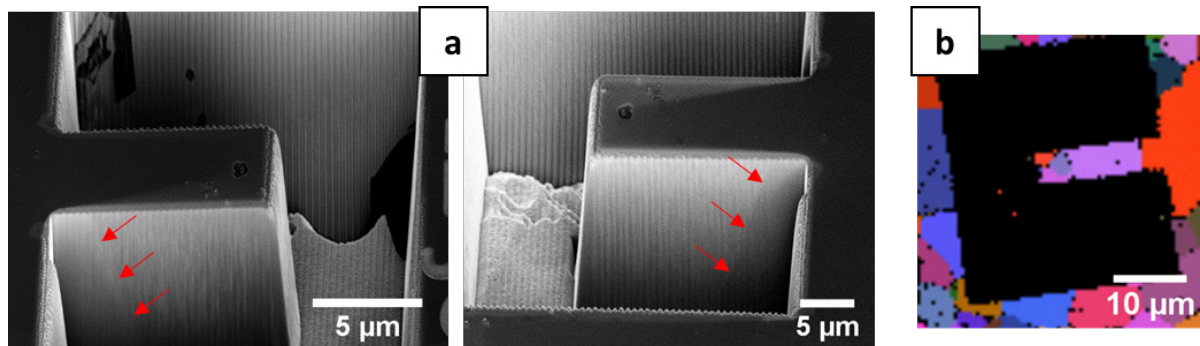


Figure IV-21 : (a) Images MEB après excavation de la matière au *FIB* (courant de 2 nA) autour d'un joint de grains. Les surfaces observées de chaque côté de la poutre en devenir permettent de connaître la direction du joint de grain dans la profondeur de l'échantillon. (b) Cartographie d'orientation cristalline *EBSD* de la même zone, qui permet de caractériser le joint de grains.

A cause de la complexité et du temps nécessaires à trouver des interfaces favorablement orientées, il a été choisi de travailler sur des joints de grains quelconques. En effet, la recherche et l'utilisation de joints de grains spéciaux réduisent drastiquement le nombre de candidats potentiels. Chaque joint a été caractérisé par *EBSD* (*Figure IV-21 - b*) et la désorientation entre les deux grains évaluée par le logiciel HKL Channel5 (Oxford Instruments, Abingdon-on-Thames, Royaume-Uni).

Quand un joint normal à la surface est trouvé, le procédé précédemment utilisé pour fabriquer les éprouvettes peut être appliqué. Les entailles ne peuvent par contre pas être usinées durant la première étape, directement sur la surface, car dans ce cas elles masquent les contrastes qui permettent de repérer le joint. Elles sont donc fabriquées juste après leur repérage, sur la préforme d'éprouvette (*Figure IV-21 - a*). Ensuite, pour éviter des effets de bords sur la géométrie de l'entaille fabriquée (*Figure II-26 - a*), la largeur de la poutre est légèrement réduite par usinage au *FIB*.

▪ *Transport : combustible vierge UO_2*

Les poutres ont été usinées sur l'échantillon de combustible vierge avec le MEB/*FIB* du laboratoire de haute activité, le LECA, mais ont été sollicitées en flexion dans un laboratoire dédié à l'étude du combustible vierge, le laboratoire UO_2 , non habilité à recevoir des échantillons contaminés et/ou irradiés. La chambre du MEB/*FIB*

étant potentiellement contaminée, l'échantillon est susceptible de le devenir également après usinage des éprouvettes. Son transport vers le laboratoire UO_2 a donc nécessité des précautions particulières. D'habitude, la décontamination se fait dans un bain d'alcool sous ultrasons, mais des expériences préliminaires ont montré que les ultrasons cassent les micro-éprouvettes. Ainsi, après fabrication de l'intégralité des éprouvettes, l'échantillon a été transféré dans une boîte à gants, dans laquelle il a été décollé de son support avec de l'acétone, puis nettoyé par des bains successifs d'éthanol. Il a ensuite été recollé sur un support adapté à l'indenteur avec de la laque d'argent. Après diverses mesures de débit de doses et de contaminations par frottis, l'échantillon a été sorti de la boîte à gants pour être envoyé par transport routier au laboratoire UO_2 .

Toutes ces étapes, atypiques pour des échantillons de microscopie, ont potentiellement affectées la propreté de l'échantillon, mais aussi rompues des micro-éprouvettes. En effet, sur trente éprouvettes préparées, quatre ont été retrouvées rompues et deux autres étaient inexploitable à cause d'impuretés présentes sur la surface de l'échantillon qui ont perturbé la flexion des éprouvettes.

▪ Transport : combustible irradié UO_2^{dc}

Dans le cas du combustible UO_2^{dc} irradié, les éprouvettes ont été usinées dans le MEB/FIB nucléarisé du laboratoire de haute activité, et ont été aussi sollicités à l'aide d'un nano-indenteur *in situ*, dans la chambre du MEB/FIB. Après fabrication des poutres, l'échantillon a été déplacé dans une cellule blindée de stockage. Dans cette cellule, il a été transféré, à l'aide de pinces, sur un autre porte échantillon incliné à 70° . Pendant que l'échantillon irradiant est dans la cellule blindée de stockage, le nano-indenteur peut être mis en place en boîte à gants dans la chambre du MEB/FIB. Ensuite, l'échantillon est de nouveau transféré dans le microscope, puis mis en place sur la platine à l'aide de pinces et d'un chargeur (Figure IV-22).

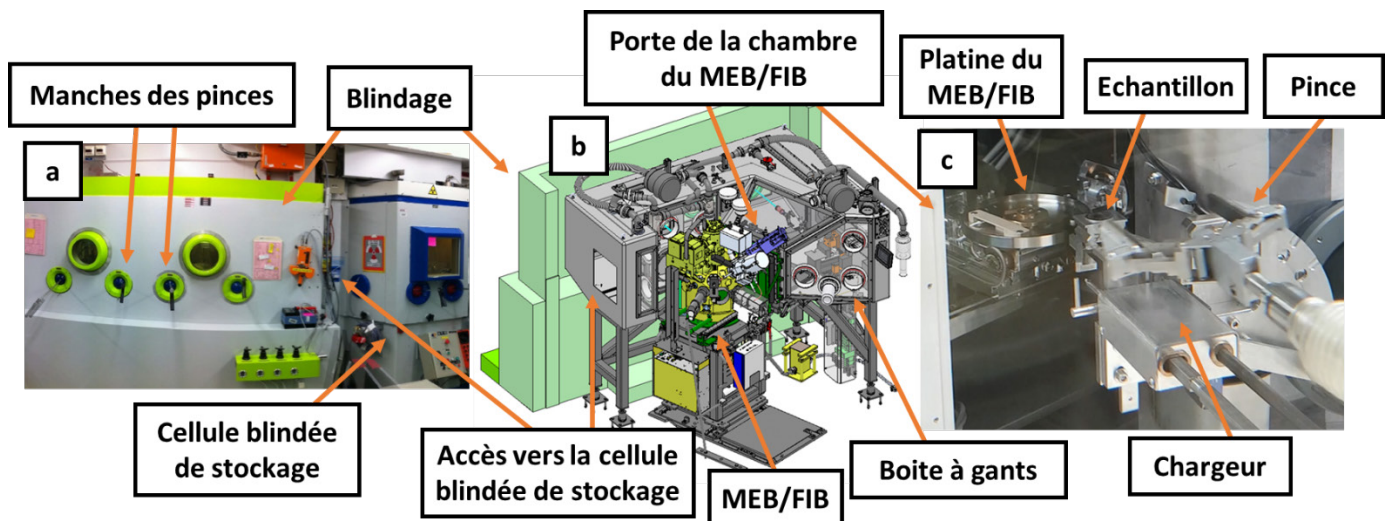


Figure IV-22 : Description du système de blindage du MEB/FIB. (a) Photographie du mur blindé équipé de hublots et de pinces. (b) Schéma de l'installation du MEB/FIB derrière le blindage. (c) Photographie à travers le hublot de la mise en place d'un échantillon dans le MEB/FIB à l'aide d'une pince et du chargeur d'échantillon.

La manipulation de petits échantillons avec des pinces de l'autre côté d'un blindage équipé de hublots est particulièrement délicate et engendre des vibrations et des risques de chutes ou de chocs de l'échantillon. Cependant, après les manipulations, aucune impureté ou éprouvette rompue n'a été constatée cette fois.

IV-3.2. Flexion de micro-éprouvettes sur combustible UO_2 vierge

IV-3.2.1. Essais mécaniques de flexion

■ Montage expérimental

Le système et les conditions d'indentation utilisées sont les mêmes que pour l'indentation *in situ* au MEB de la *partie III-3.3.2*. Le nano-indenteur est un modèle PI 85L SEM (Hysitron, Eden Prairie, Minnesota, USA), à l'intérieur de la chambre d'un MEB Nova NanoSEM 450 (FEI, Hillsboro, Oregon, USA). Pour avoir une bonne visibilité au MEB de la surface visée, une pointe de type *Cube Corner* est utilisée. Dans ce type d'indenteur, l'échantillon est obligatoirement de petites dimensions. La tête d'indentation et le porte échantillon sont fixés au même bâti, qui est lui-même monté sur la platine du microscope (*Figure IV-23*). L'échantillon est placé à 90° de la pointe, qui n'est mobile que dans une seule direction de l'espace : la direction normale à la surface de l'échantillon. Pour réaliser une indentation, l'échantillon « monte » vers la pointe. Quand ils sont assez proches l'un de l'autre, l'essai peut commencer, et c'est alors la pointe qui descend vers la surface pour appliquer la charge souhaitée.

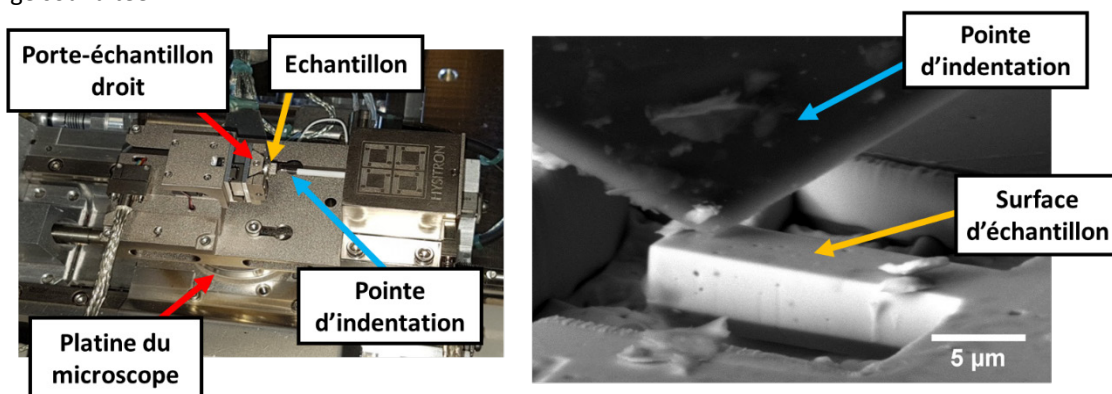


Figure IV-23 : (à gauche) Photographie de la mise en place du nano-indenteur *in situ* Hysitron : il se monte sur la platine du microscope. L'échantillon est placé en face, à 90° de la pointe, sur un porte échantillon vertical, le bâti est commun à la pointe et à l'échantillon. (à droite) Image MEB de la pointe d'indentation quand la pointe d'indentation est au contact de l'échantillon.

■ Sollicitation

La visée se fait itérativement, comme pour la zircone (*partie III-3.3.3*), c'est-à-dire qu'une indentation est réalisée à une faible charge de 0,1 mN, ce qui crée une marque visible à la surface de l'échantillon sans risque de fracture des éprouvettes. Ensuite, l'échantillon est déplacé petit à petit jusqu'à avoir une marque d'indentation à l'endroit souhaité pour la sollicitation. Toutes les éprouvettes ont ensuite été testées en imposant le déplacement à une vitesse de 5 nm/s. Les courbes force-déplacement obtenues sont corrigées de la pénétration de la pointe dans la matière de la même façon que sur ZrO_2 (*partie III-3.3.3*) : le déplacement mesuré par un essai d'indentation réalisé à proximité de la micro-éprouvette est soustrait à la courbe de flexion.

Des images de chaque essai sont prises au MEB et une vidéo de chaque flexion est enregistrée. Des essais de charges et décharges successives ont été réalisés. L'étude de la vidéo de tels essais montre un comportement élastique de l'éprouvette, que les éprouvettes soient entaillées ou non. Lorsque la pointe entre au contact de l'éprouvette (*Figure IV-24 - 1*), la position de la base de la poutre est notée (flèche bleue) et la direction horizontale à partir de ce point est représentée par une ligne en pointillés bleus. De même, la position de l'extrémité de la poutre est relevée (flèche orange), et la direction horizontale qui en découle est représentée par une ligne en pointillés orange. Ces repères permettent de mettre en évidence la flèche de la poutre pendant la sollicitation (*Figure IV-24 - 2*), puis à la décharge, le retour à la position initiale (*Figure IV-24 - 3*). A la fin de la seconde montée en charge, juste avant la rupture de l'éprouvette, la flèche de l'éprouvette est nettement plus importante que lors de la première montée (*Figure IV-24 - 4*). La pente de la courbe force-déplacement de la seconde montée est identique à la pente de la première, ce qui est également synonyme d'absence de plasticité.

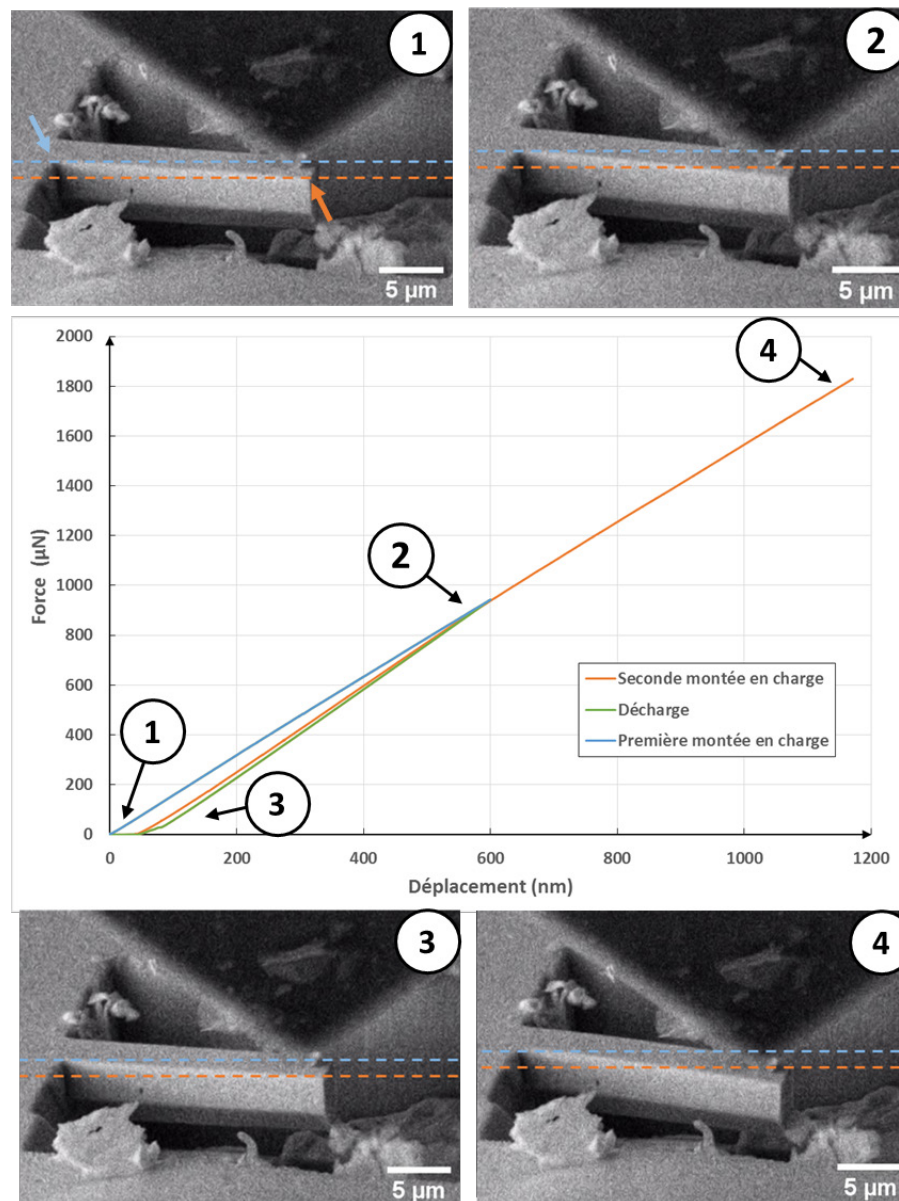


Figure IV-24 : Courbe force-déplacement d'un essai de flexion sur UO_2^{st} vierge par charges et décharges successives, la pointe utilisée est de type *Cube Corner*. Les images de la vidéo MEB de l'essai sont données en fonction des étapes de sollicitation. (1) : La pointe est au contact de l'éprouvette. (2) : Fin de la première montée en charge. (3) : Fin de la décharge, la pointe est juste au contact de l'éprouvette. (4) : Fin de la seconde montée en charge, juste avant la rupture de l'éprouvette. La ligne horizontale de pointillés bleus est positionnée sur la première image au niveau de l'encastrement de la poutre (flèche bleue). La ligne horizontale orange est positionnée sur la première image au niveau du coin de l'éprouvette, en bout de poutre (flèche orange).

IV-3.2.2. Résultats : contrainte à rupture σ_R

■ *Fractographie*

Les éprouvettes non-entaillées ont préférentiellement cassé, comme attendu, à leur base, là où les contraintes sont les plus grandes. Deux poutres ont été usinées dans chacune des familles principales de plans cristallographiques : $\{100\}$, $\{110\}$ et $\{111\}$. Les surfaces de rupture ont été systématiquement imagées au MEB, montrant des faciès typiques d'une rupture fragile, mais dont la morphologie peut varier d'un cas à un autre (Figure IV-25). Certains sont particulièrement nets et lisses (Figure IV-25 - $\{111\}$), d'autres présentent des légers accidents (Figure IV-25 - $\{100\}$), alors que quelques autres montrent une rupture hors du plan visé (Figure IV-25 - $\{110\}$).

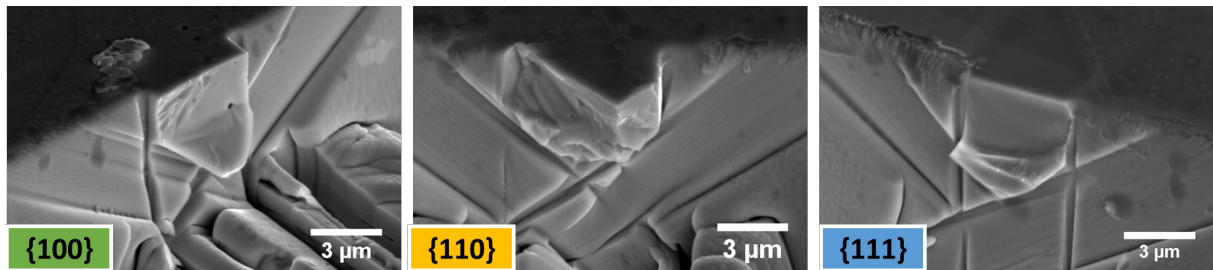


Figure IV-25 : Images MEB de surfaces de rupture de micro-éprouvettes non-entaillées usinées dans des grains orientés de combustible vierge UO_2^{st} .

Afin d'essayer de relier la morphologie des faciès de rupture avec une éventuelle orientation cristalline, les projections stéréographiques des grains visés ont été tracées et mises en regard de chacune des surfaces de rupture des deux éprouvettes testées de chaque orientation.

Une des deux éprouvettes orientées selon $\{100\}$ présente un faciès très lisse, tandis que la deuxième présente un faciès légèrement accidenté sur le bas de la section (Figure IV-26). Le plan cristallin visé, repéré par des pointillées, est bien aligné avec le plan de rupture et est perpendiculaire à l'axe de la poutre.

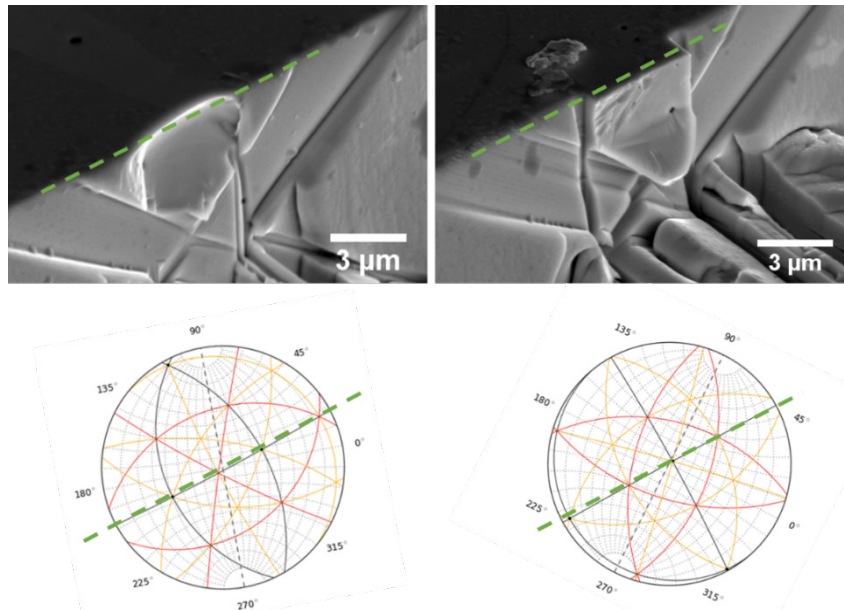


Figure IV-26 : Images MEB de faciès de rupture d'éprouvettes non-entaillées sur UO_2^{st} vierge, orientées pour solliciter un plan de type $\{100\}$ repéré par des pointillées verts. La projection stéréographique associée (correspondante à une vue de dessus), est donnée sous chaque image MEB. Les courbes rouges correspondent aux projetés des plans $\{111\}$, les jaunes aux $\{110\}$ et les noires aux $\{100\}$.

Pour les éprouvettes orientées dans un plan $\{110\}$ (Figure IV-27), une des deux éprouvettes présente un faciès parfaitement lisse, alors que la seconde éprouvette présente un faciès plus accidenté qui ne suit pas le plan perpendiculaire à l'axe de l'éprouvette : il ne suit donc pas un plan $\{110\}$, repéré par des pointillés jaunes. Si la projection stéréographique est étudiée, il est possible de remarquer que l'angle pris en surface par le plan de rupture correspond bien à l'angle formé par la trace de deux plans de type $\{111\}$ dans ce grain (pointillés bleus).

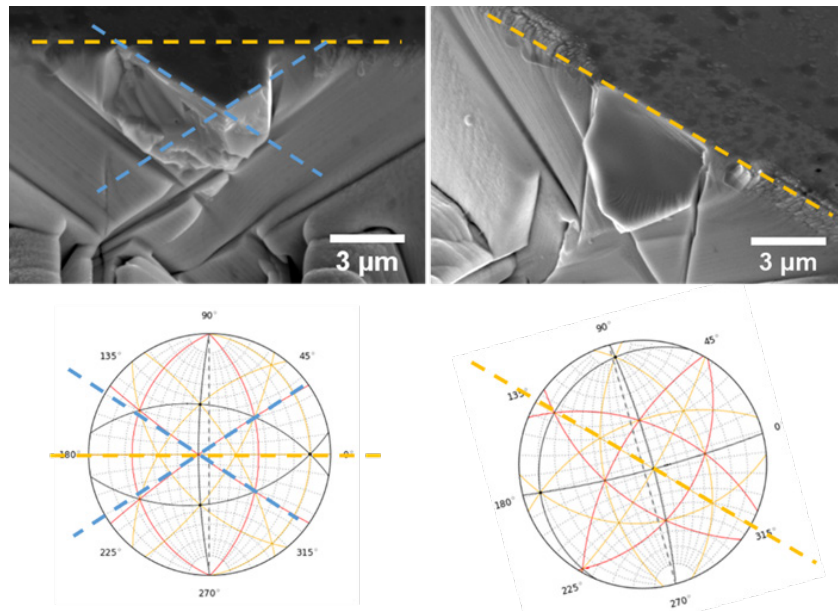


Figure IV-27 : Images MEB de faciès de rupture d'éprouvettes non-entallées sur UO_2^{st} vierge, orientées pour solliciter un plan de type $\{110\}$ repéré par des pointillées jaunes. La projection stéréographique associée (correspondante à une vue de dessus), est donnée sous chaque image MEB. Les courbes rouges correspondent aux projetés des plans $\{111\}$, les jaunes aux $\{110\}$ et les noires aux $\{100\}$.

Les deux éprouvettes dans un plan $\{111\}$ présentent des faciès parfaitement lisses, en tout cas dans la partie haute de l'éprouvette (Figure IV-28). Dans la partie basse, comme décrit précédemment (partie III-3.5.2), la fissure a déviée à cause de contraintes de compression.

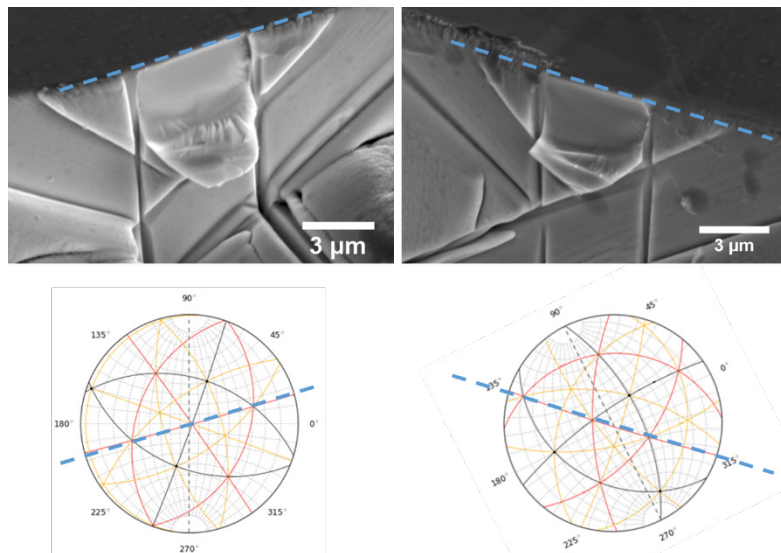


Figure IV-28 : Images MEB de faciès de rupture d'éprouvettes non-entallées sur UO_2^{st} vierge, orientées pour solliciter un plan de type $\{111\}$ repéré par des pointillées bleues. La projection stéréographique associée (correspondante à une vue de dessus), est donnée sous chaque image MEB. Les courbes rouges correspondent aux projetés des plans $\{111\}$, les jaunes aux $\{110\}$ et les noires aux $\{100\}$.

■ Contraintes mesurées

Les contraintes à rupture σ_R des éprouvettes ont été calculées (Tableau IV-4) par une formule (III-4). La contrainte à rupture moyenne des différents plans est de $2,96 \pm 0,42$ GPa. Pour les éprouvettes orientées, les plans $\{111\}$ semblent moins résistants que les autres plans, avec des valeurs de 2,95-3,94 GPa pour $\{100\}$, 2,09-3,48 GPa pour $\{110\}$ et 2,60-2,72 GPa pour $\{111\}$. Il est d'ailleurs fortement probable que la valeur calculée pour le plan $\{110\}$ ne soit pas précise, puisque une des surfaces de rupture n'était ni droite, ni suivant le plan cristallin visé (Figure IV-27). La rupture n'étant pas dans un plan droit, la distance entre le point d'application de la force et la surface de rupture L peut être encadrée par deux valeurs. Une moyenne des deux valeurs extrêmes de L est utilisée pour calculer σ_R dans ce cas. Etonnement, cette éprouvette présente une contrainte à rupture élevée : 3,2 GPa, contre 2,09 GPa pour l'autre éprouvette.

L'écart-type des données n'est pas calculé puisque seulement deux résultats ont été obtenus dans chaque direction. La dispersion dans {111} est très faible : 0,12 GPa d'écart et les deux faciès sont très similaires. Pour les plans {110}, où le plan de rupture avait dévié pour une poutre sur deux, la dispersion est beaucoup plus élevée : jusqu'à 1,39 GPa d'écart. Finalement la dispersion pour {100} est intermédiaire : 0,57 GPa d'écart.

Tableau IV-4 : Contraintes à rupture en fonction de la famille de plan cristallographique visée, obtenues par essais de flexion d'éprouvettes non-entaillées sur UO₂st vierge, calculées par une solution analytique. La valeur moyenne indiquée est la moyenne des mesures obtenues $\pm$ l'écart-type calculé sur ces mesures. L'incertitude issue de la loi de propagation des erreurs est d'environ 10%. * : l'éprouvette a rompue en laissant un faciès angulaire (Figure IV-27).

	Contraintes à rupture mesurées (GPa) en fonction des plans cristallographiques testés			
Méthode de calcul	{100}	{110}	{111}	Moyenne
<i>Formule analytique</i>	2,95 / 3,94	2,09 / 3,20*	2,60 / 2,72	2,96 $\pm$ 0,42
Nombre d'essais	2	2	2	6

▪ Rupture sur défauts

Sur certaines éprouvettes, la rupture n'a pas eu lieu à l'encastrement. Dans un tel cas, une porosité a été systématiquement observée dans le plan de la rupture (Figure IV-29). Si ces défauts sont considérés comme des sphères, leur rayon apparent, mesurés au MEB sur le faciès de rupture de la poutre, se situe entre 0,25 μ m et 0,60 μ m.

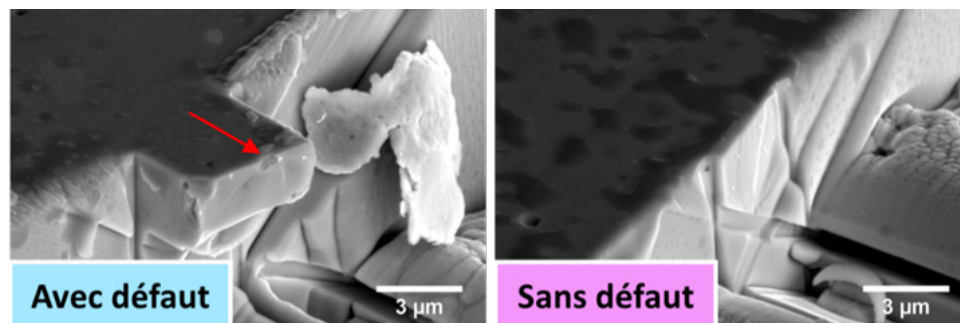


Figure IV-29 : Images MEB de faciès de rupture d'éprouvettes non-entaillées. (à gauche) : la rupture n'a pas eu lieu à l'encastrement de la poutre mais sur un défaut, repéré par une flèche rouge. (à droite) : la rupture a eu lieu à l'encastrement, là où les contraintes sont maximales.

La valeur de contraintes à rupture quand il y a présence d'un défaut est plus faible : environ 1,93 GPa contre en moyenne 2,96 GPa sans défaut (Tableau IV-5).

Tableau IV-5 : Contraintes à rupture obtenues par essais de flexion d'éprouvettes non-entaillées, avec et sans défaut, sur UO₂st vierge, calculées par la une solution analytique. La valeur indiquée est la moyenne des mesures obtenues $\pm$ l'écart-type calculé sur ces mesures. L'incertitude issue de la loi de propagation des erreurs est d'environ 10%.

	Contraintes à rupture mesurées (GPa)	
Méthode de calcul	Moyenne Avec défauts	Moyenne Sans défaut
<i>Formule analytique</i>	1,93 $\pm$ 0,25	2,96 $\pm$ 0,42
Nombre d'essais	4	6

IV-3.2.3. Résultats : ténacité K_{Ic} et taux de libération d'énergie critique G_c

Après le transport de l'échantillon pendant lequel plusieurs poutres ont rompu, six éprouvettes préparées dans des grains et orientées cristallographiquement ont été testées.

Quand elles sont entaillées au *FIB*, les faciès de rupture des éprouvettes sont moins accidentés : la rupture se produit toujours depuis l'entaille (*Figure IV-30*). Cependant, des petites déviations sont observées dans les plans $\{100\}$ et $\{110\}$, attribuables à un effet « cantilever curl », mais non présentes dans le cas des plans $\{111\}$. Cui *et al.* [96] observent d'ailleurs ce genre de déviation sur des monocristaux de spinelle. Ils expliquent qu'elles ne sont présentes que dans les plans les moins favorables à la rupture. Selon cette théorie, les faciès des plans $\{111\}$ montreraient alors une rupture plus favorable ici.

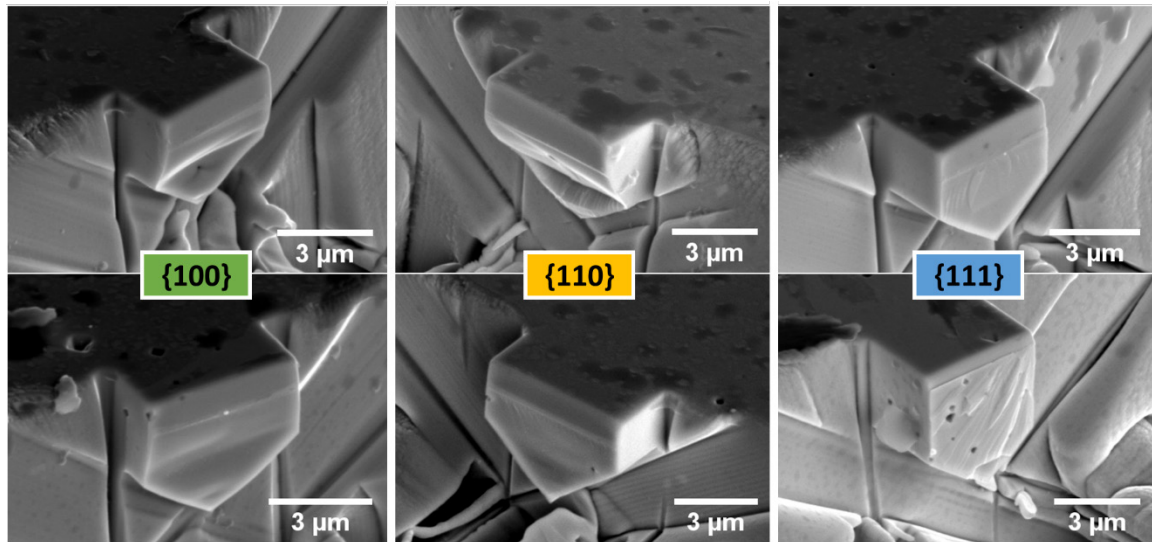


Figure IV-30 : Images MEB de surface de rupture de micro-échantillons entaillés, fabriqués dans de l' UO_2 vierge, en fonction des plans cristallins visés. Les faciès sont lisses et nets, indiquant une rupture fragile des éprouvettes. L'éprouvette $\{111\}$ du bas a cassé durant le transport de l'échantillon, et donc aucune valeur de ténacité n'a été mesurée pour cette éprouvette.

Cette explication n'est que qualitative et à cause du faible nombre d'éprouvettes, il est difficile de conclure avec certitude sur l'ordre de ténacité des plans. Cependant, les résultats de ténacités de chaque plan sont cohérents avec l'ordre de résistance obtenu pour les contraintes à rupture, soit : $\{100\} > \{110\} > \{111\}$, avec des valeurs respectivement de $1,91-2,27 \text{ MPa.m}^{0,5}$, $1,76-2,27 \text{ MPa.m}^{0,5}$ et $1,53 \text{ MPa.m}^{0,5}$ (*Tableau IV-6*). Au vu de l'incertitude sur la mesure (10% environ), et au vu de la dispersion des valeurs sur les plans $\{100\}$ et $\{110\}$, il semble raisonnable de dire que le plan $\{111\}$ est le plan le plus faible, même s'il ne présente qu'une seule éprouvette exploitable. Les plans $\{100\}$ et $\{110\}$ sont par contre difficilement dissociables.

Tableau IV-6 : Résultats de ténacité K_{Ic} et de taux critique de libération d'énergie G_c , obtenus par calculs *FEM* anisotropes, sur différentes familles de plans cristallographiques, sur UO_2 vierge. La valeur indiquée est la moyenne des valeurs moyennes de chaque orientation $\pm$ l'écart-type calculé. L'incertitude issue de la loi de propagation des erreurs est d'environ 10% sur K_{Ic} et 20% sur G_c (partie III-3.4.5).

	Ténacité mesurée en fonction des plans cristallographiques testés							
	{100}		{110}		{111}		Moyenne	
Méthode de calcul	K_{Ic} ($\text{MPa.m}^{0,5}$)	G_c (J.m^{-2})	K_{Ic} ($\text{MPa.m}^{0,5}$)	G_c (J.m^{-2})	K_{Ic} ($\text{MPa.m}^{0,5}$)	G_c (J.m^{-2})	K_{Ic} ($\text{MPa.m}^{0,5}$)	G_c (J.m^{-2})
<i>FEM anisotrope</i>	1,91 / 2,27	13,5 / 19,4	1,76 / 1,82 / 2,27	11,4 / 13,7 / 21,7	1,53	9,7	1,86 $\pm$ 0,27	13,9 $\pm$ 4,8
Nombre d'essais	2		3		1		6	

IV-3.2.4. Résultats : module de Young E

La méthode de mesure et la routine de calculs par éléments finis ont été de nouveau appliquées (*partie III-3.4.4*) sur l'ensemble des éprouvettes testées, qu'elles soient entaillées ou non. A chaque type de plan $\{ijk\}$ sollicité, la direction $\langle ijk \rangle$ est dans l'axe de la poutre, et donc il est possible de mesurer le module de Young en flexion de cette direction. Ces modules sont comparés à ceux déterminés analytiquement par l'équation (III-16), en utilisant les modules élastique de l' UO_2 . Les valeurs mesurées sur éprouvettes entaillées et sur éprouvettes non-entaillées varient d'environ 10%. L'entaille entraîne probablement des erreurs dans la mesure, puisque ni l'implantation ionique, ni le rayon de fond d'entaille ne sont pris en compte dans la modélisation de l'éprouvette (entaille supposée parfaite).

Contrairement aux modules E mesurés sur zircone cubique, ils sont cette fois plutôt cohérents avec les valeurs théoriques. L'ordre de rigidité mesuré est en accord avec la théorie : $E_{\langle 100 \rangle} > E_{\langle 110 \rangle} > E_{\langle 111 \rangle}$; les moyennes des mesures étant respectivement autour de 300 GPa, 190 GPa et 155 GPa, contre des valeurs théoriques de, respectivement de 338 GPa, 199 GPa et 169 GPa (*Tableau IV-7*).

Tableau IV-7 : Résultats des calculs de modules de Young, sur UO_2 vierge, déterminés par la méthode des éléments finis. La valeur indiquée est la moyenne des mesures obtenues $\pm$ l'écart-type calculé sur ces mesures. Le module était un paramètre ajusté en comparant la flèche calculée numériquement et la flèche mesurée expérimentalement.

		Modules de Young E en fonction des plans cristallographiques testés (GPa)			
Méthode de calcul	Type de poutre	$\{100\}$	$\{110\}$	$\{111\}$	Moyenne
FEM isotrope	Entaillée ¹	310 / 253	163 / 208 / 155	169	209 $\pm$ 34
	Non-entaillée ²	317 / 324	231 / 205	148 / 148	230 $\pm$ 10
Théorique (III-16)		338	199	175	237
Nombre d'essais	¹ / ²	2 / 2	3 / 2	1 / 2	6 / 6

IV-3.2.5. Résultats : essais sur joints de grains

- Eprouvettes entaillées

Le procédé de fabrication des éprouvettes avec un joint de grains est plus complexe et prend beaucoup plus de temps, mais l'étape la plus délicate reste le positionnement de l'entaille sur le joint de grains. Dans le but de mesurer la ténacité d'un joint de grains, il faut en théorie positionner l'entaille parfaitement dans le plan du joint. En pratique c'est très compliqué à obtenir, puisque le joint de grain n'est pas forcément perpendiculaire à la surface de l'échantillon.

Ainsi, même avec toutes les précautions possibles, il arrive régulièrement que l'entaille ne corresponde pas exactement avec le joint. Par exemple elle peut être décalée d'un côté de la poutre (*Figure IV-31 – à droite*), ou bien dans un plan parallèle au joint, mais légèrement tradatée (*Figure IV-31 – au milieu*). Dans ces deux cas, la rupture a suivi le plan de l'entaille, sans être affectée par la proximité du joint de grain, rendant la mesure inacceptable. Ainsi, la seule solution satisfaisante est de positionner l'entaille pour qu'elle aboutisse sur le joint, même si le plan de l'entaille et le plan du joint ne sont pas parallèles (*Figure IV-31 – à gauche*). Cependant, même dans ce cas, la rupture n'a pas suivi le plan du joint, mais a continué dans le plan défini par l'entaille.

Finalement, sur les trois éprouvettes entaillées testées, aucune ne permet la mesure de ténacité du joint de grains. Ces essais apportent cependant un enseignement qualitatif : les interfaces entre les deux grains ne sont pas particulièrement une zone propice à la propagation d'une fissure. En effet, la rupture se fait préférentiellement dans le plan de l'entaille, sans dévier vers le joint de grains, même si celui-ci est très proche (*Figure IV-31 – à gauche*).

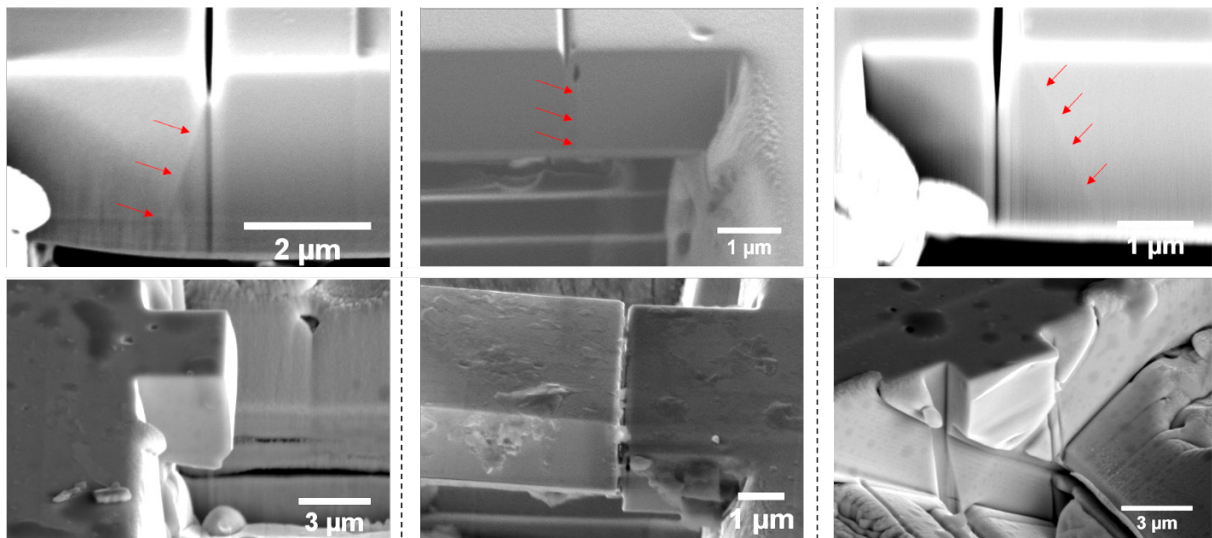


Figure IV-31 : Images MEB des poutres pré-entailées pour la mesure de ténacité sur joints de grains d' UO_2^{st} vierge. (en haut) Image de côté de la poutre, montrant le positionnement du joint de grains par rapport à l'entaille. (en bas) Image correspondante, après rupture, de la même éprouvette. La comparaison des deux images montre que la rupture n'a pas suivi le joint visé. Les flèches rouges pointent le joint de grains.

▪ Eprouvettes non-entailées

Trois éprouvettes ont été préparées de façon à avoir un joint de grains à peu près normal à l'axe de la poutre et situé à proximité de l'encastrement de celle-ci. Ce type d'essai est cette fois satisfaisant pour tester un joint de grains, puisque sur les trois éprouvettes testées, la rupture suit à chaque fois parfaitement le joint (Figure IV-32). Dans ces cas, la rupture ne se fait plus à l'encastrement de la poutre, mais sur le joint, même si les contraintes y sont moins importantes. Il semblerait donc que le joint de grains agisse comme une zone préférentielle d'amorçage de la rupture.

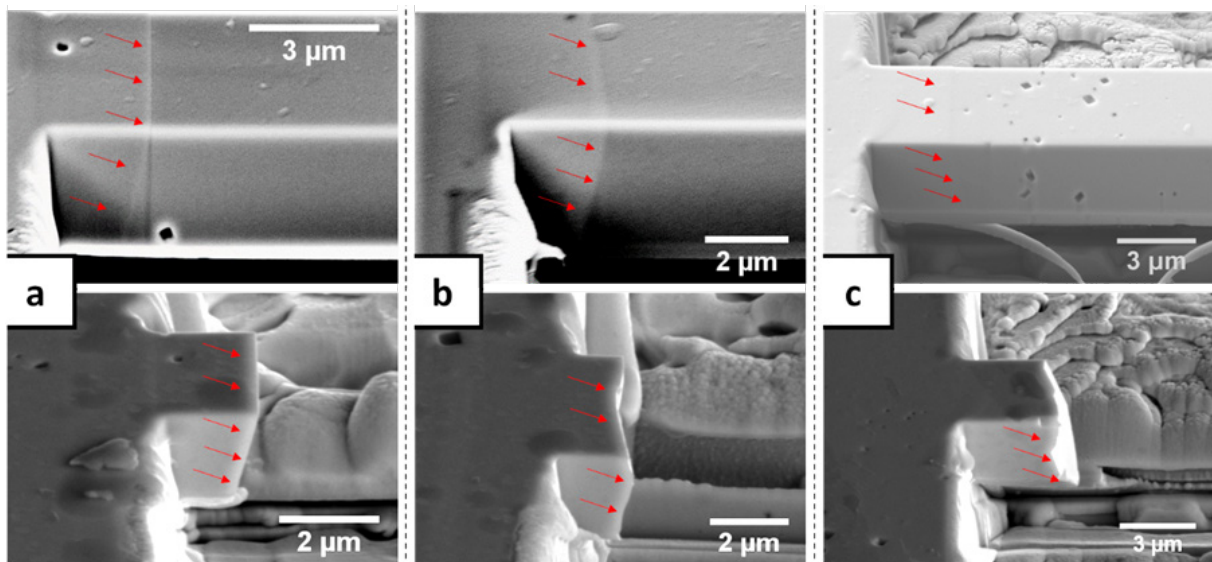


Figure IV-32 : Images MEB des poutres non-entailées pour mesure de contraintes à rupture sur joints de grains d' UO_2^{st} vierge. (en haut) Image de côté de la poutre, montrant le positionnement du joint de grains dans l'éprouvette. (en bas) Image correspondante, après rupture, de la même éprouvette. La comparaison des deux images montre que la rupture suit parfaitement la forme du joint. Les flèches rouges pointent le joint de grains.

Les faciès de rupture de ces éprouvettes sont très lisses (*Figure IV-33*), encore plus que les éprouvettes orientées dans des plans de type {111}. Il n'y a plus d'effet de déviation de la fissure, la surface de rupture épouse complètement la forme du joint de grains.

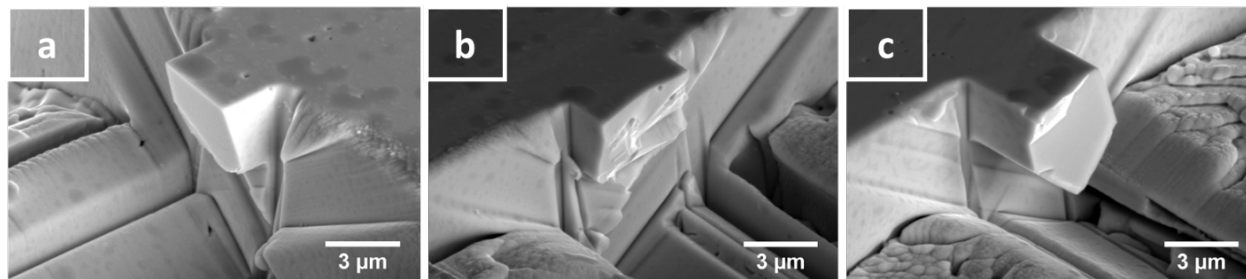


Figure IV-33 : Images MEB de surfaces de rupture de micro-éprouvettes non-entaillées usinées de telle manière à solliciter un joint de grains de combustible vierge UO_2^{st} . Les faciès correspondent aux éprouvettes présentées dans la Figure IV-32.

En observant de tels faciès de rupture, il semblerait que le joint soit une zone préférentielle pour l'amorçage de la rupture, et donc une résistance plus faible est attendue. Pourtant, la contrainte à rupture moyenne des éprouvettes sur joints de grains est de $2,53 \pm 0,35$ GPa. Elle est donc à peine plus faible que pour la moyenne des essais dans les grains, de $2,87 \pm 0,51$ GPa (*Tableau IV-8*).

Tableau IV-8 : Contraintes à rupture obtenues par essais de flexion d'éprouvettes non-entaillées, avec défaut, sans défaut et avec joint de grains, sur UO_2^{st} vierge, calculées par la méthode des éléments finis prenant en compte l'encastrement non idéal. La valeur indiquée est la moyenne des mesures obtenues $\pm$ l'écart-type calculé sur ces mesures. L'incertitude issue de la loi de propagation des erreurs est d'environ 10% (partie III-3.4.5).

	Contraintes à rupture mesurées (GPa)		
Méthode de calcul	Moyenne Avec défauts	Moyenne Sans défaut	Moyenne Joint de grains
Éléments finis	$1,93 \pm 0,25$	$2,96 \pm 0,42$	$2,53 \pm 0,35$
Nombre d'essais	4	6	3

IV-3.3. Flexion de micro-éprouvettes sur combustible UO_2^{dc} irradié

IV-3.3.1. Essais mécaniques de flexion

▪ Montage expérimental

Le nano-indenteur NHT² (CSM Instrument, Peseux, Suisse) est dédié à l'étude du combustible irradié. A cause de la nécessité de télé-manipuler les échantillons et les accessoires tels que le nano-indenteur, celui-ci ne pouvait pas avoir le même fonctionnement que le nano-indenteur précédemment utilisé sur UO_2^{st} vierge, c'est-à-dire qu'il ne peut pas être monté sur la platine du microscope (*partie IV-3.2*). Pour répondre aux différentes contraintes de l'environnement nucléaire, le nano-indenteur, mais aussi le MEB/FIB, ont été modifiés afin de pouvoir installer l'indenteur sur la porte du microscope.

Une fois le nano-indenteur en place, l'échantillon est chargé sur la platine du MEB/FIB avec des pinces et à l'aide d'un chargeur spécial, depuis l'autre côté d'un hublot du mur blindé (*Figure IV-22*). La porte du MEB se referme, le vide est fait dans la chambre, puis la tête du nano-indenteur pivote pour se retrouver en position de travail, c'est-à-dire face à l'échantillon (*Figure IV-34*). Dans cette position, il est incliné à 20° par rapport à la platine du microscope. Pour pouvoir faire des essais d'indentation, l'échantillon doit être à perpendiculaire à la pointe. L'échantillon doit donc être installé à 70° de la platine du MEB, sur un porte-échantillon incliné spécialement conçu. En configuration de travail pour l'indentation, le FIB ne peut plus être utilisé car l'échantillon ne peut plus être placé dans l'alignement de la colonne ionique. Une pointe *Cube Corner* est de nouveau utilisée pour la bonne visibilité de la zone de test qu'elle autorise au microscope.

Le système est composé de plusieurs pièces fixées sur différents endroits du microscope : le nano-indenteur sur la porte du MEB, l'échantillon sur un porte-échantillon incliné et le porte-échantillon sur la platine du MEB. Par

conséquent, la rigidité du bâti n'est plus garantie : il peut y avoir du jeu sur les jonctions. Afin de remédier à cela, le nano-indenteur a été choisi avec une pièce de référence qui se positionne devant la pointe. Elle a une forme de U pour pouvoir laisser une fenêtre de visibilité pour le MEB (*Figure IV-34*). Dans la position de travail prévue pour l'indentation, l'échantillon est amené au contact de la pièce de référence. Lorsque le contact est atteint, l'échantillon et la pièce de référence frottent l'un contre l'autre. Dans ce cas, un déplacement de la platine du MEB entraîne un mouvement de la référence visible sur l'image MEB, ce qui permet de vérifier que le contact entre la référence et l'échantillon est bien atteint. Au contact, les différents jeux mécaniques du système se callent et la rigidité devient acceptable pour l'indentation. Une fois dans cette configuration, c'est la pointe qui descend vers la surface pour réaliser un essai, la pièce de référence et l'échantillon étant immobiles.

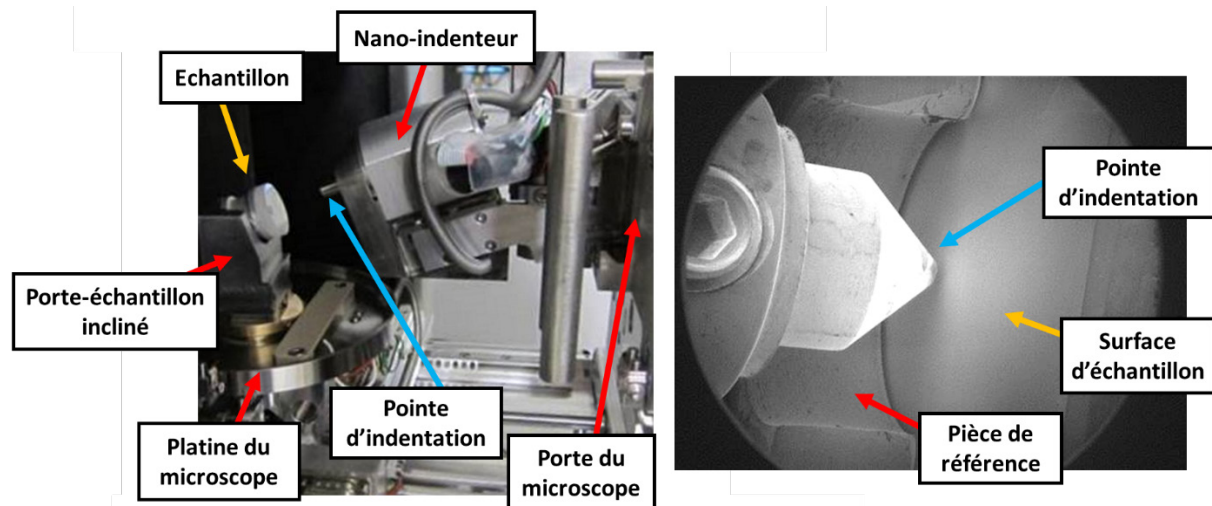


Figure IV-34 : (à gauche) Photographie de la mise en place du nano-indenteur *in situ* NHT² : il se monte sur la porte du microscope. L'échantillon est placé en face, à 90° de la pointe, sur un porte échantillon incliné. (à droite) Image MEB de la tête d'indentation quand le nano-indenteur est amené en position classique de sollicitation : la pièce de référence est alors complètement au contact de la surface de l'échantillon.

■ Calibration

Pour solliciter des micro-éprouvettes, il faut être capable d'appliquer une force très précisément. Pour cela il faut pouvoir bouger finement la surface de l'échantillon par rapport à la pointe d'indentation. Cependant, dans le montage expérimental d'indentation prévu, la pièce de référence frotte sur la surface lorsque la platine est déplacée. Cela génère des légers mouvements relatifs aléatoires entre la pointe et la surface qui ne peuvent pas être anticipés. Même si ces déplacements ne sont que de l'ordre de quelques microns, la précision spatiale n'est pas satisfaisante dans le cadre des essais envisagés.

Afin de remédier à ce problème, le système est utilisé en dehors de ses conditions d'utilisation prévues. C'est-à-dire que le contact entre la pièce de référence et la surface de l'échantillon n'est pas maintenu : cela permet des mouvements libres et précis. Par contre, la rigidité du bâti n'est pas assurée dans ce cas, ce qui peut entraîner des mesures de déplacements sous la surface inexactes lors d'un essai d'indentation. La visée se fait itérativement, comme dans le cas précédent (*partie IV-3.2.1*). L'emplacement exact de l'indentation peut se repérer en appliquant une très faible charge, qui marque la surface, sans risquer de rompre l'éprouvette visée.

Par contre, dans ce mode de fonctionnement, des indentations de contrôle sur silice fondue, un matériau étalon pour l'indentation, montrent que la valeur de déplacement mesurée est fausse. La courbe obtenue quand la référence est au contact correspond bien à la courbe obtenue par un autre nano-indenteur (G200, *partie III-2*). Par contre, quand la référence n'est plus au contact, un déplacement supplémentaire est mesuré (*Figure IV-35*).

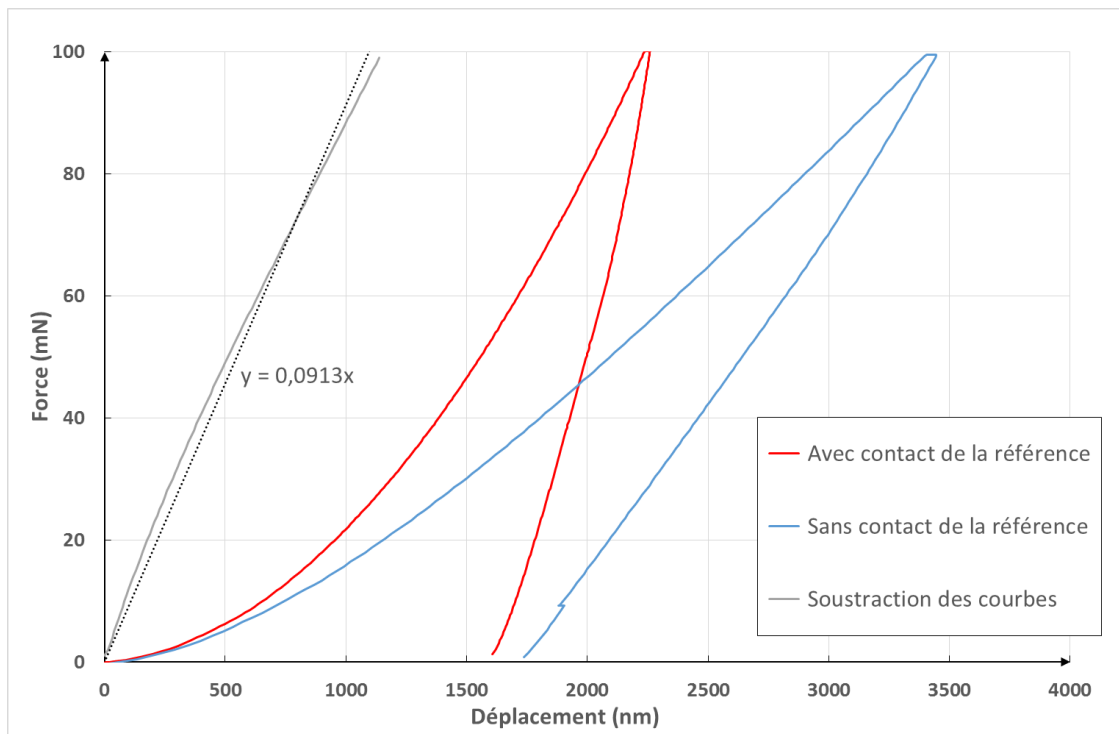


Figure IV-35 : Courbes d'indentation obtenues avec une pointe *Cube Corner* dans de la silice fondue. Lorsque la pièce de référence est au contact de l'échantillon, la courbe est très similaire à celle obtenue sur un autre nano-indentation (G200). Quand la pièce de référence n'est pas au contact, une souplesse dans le système influence la courbe force-déplacement.

La soustraction des différentes courbes d'indentation montre que la différence est quasi-linéaire, c'est-à-dire que le déplacement supplémentaire est proportionnel à la force appliquée. Il semblerait donc que ce soit induit pas une souplesse dans le système, et ce uniquement quand la pièce de référence n'est pas au contact de l'échantillon. De plus, de nombreux essais d'indentation ont été réalisés avec différentes pointes et sur différents matériaux et montrent que cette valeur de souplesse est reproductible. La souplesse étant quasi-linéaire, et surtout, reproductible, il a été choisi de travailler tout de même dans ces conditions. La valeur de déplacement mesurée par flexion sera corrigée en soustrayant le déplacement mesuré lors d'un essai d'indentation sur le matériau massif réalisé à la même charge. Ce dernier essai, et donc la correction, inclura la pénétration de la pointe dans la matière (*partie III-3.3.3*), mais aussi le déplacement supplémentaire dû à la souplesse du système.

▪ Sollicitation

Les essais ont tout d'abord été pilotés en déplacement à une vitesse de 5 nm.s^{-1} , pour imposer le même type de sollicitation que sur UO_2^{st} vierge. Par visualisation au MEB, l'essai de flexion semble se dérouler correctement, cependant, sur la courbe force-déplacement le moment où la pointe touche la surface de l'éprouvette semble ne pas être détecté. Les forces à rupture mesurées sont aberrantes et extrêmement basses, de l'ordre de 0,1 mN. Aucune solution n'a pu être trouvée, et l'explication la plus probable proviendrait de la faible rigidité du système. Les résultats de ces essais ont donc été écartés (6 sur 34 éprouvettes fabriquées), mais leur faciès de rupture ont tout de même été utilisés pour l'analyse.

Ensuite, un autre mode de sollicitation a été choisi : la force imposée, à une vitesse de $0,05 \text{ mN.s}^{-1}$. Avec ce mode de sollicitation, le contact est bien détecté et les valeurs de force à rupture, de l'ordre de quelques mN, sont cohérentes. Finalement, pour solliciter toutes les autres éprouvettes, c'est ce mode et cette vitesse de sollicitation qui ont été choisis.

Afin de valider les résultats fournis par ce nano-indenteur, deux essais de flexion d'éprouvettes entaillées sur ZrO_2 8Y-FSZ ont été réalisés avec celui-ci. Les poutres n'ont pas été orientées par *EBSD*, et les valeurs de K_{IC} , calculées par une formule analytique (car pas d'information disponible sur l'orientation cristalline et donc pour le calcul anisotrope) sont de $1,56 \text{ MPa.m}^{0,5}$ et $1,96 \text{ MPa.m}^{0,5}$. La première valeur est donc bien dans la gamme de valeurs obtenues précédemment (*partie III-3*), soit entre $1,14 \text{ MPa.m}^{0,5}$ et $1,68 \text{ MPa.m}^{0,5}$ (formule analytique), tandis que la seconde est légèrement supérieure.

Deux essais cycliques de charges-décharges ont été réalisés et des vidéos de l'essai ont été enregistrées au MEB. Les vidéos permettent de mettre en évidence une flèche croissante au fil des cycles, mais aussi un retour à la position initiale à la décharge pour chaque cycle. Il faut cependant noter que cette fois, les courbes force-déplacement des différents cycles ne se superposent pas parfaitement. Une éventuelle plastification semble peu probable, car cela n'a jamais été observé sur les essais précédents sur ZrO_2 et UO_2^{st} vierge, ou bien dans la littérature sur des céramiques. De plus, cette légère évolution ne paraît pas cohérente avec les observations MEB, où le retour semble toujours élastique. L'explication la plus probable viendrait donc de la mauvaise rigidité du montage d'indentation. Il faut noter que les courbes ne se superposent certes pas aussi bien qu'avec le nano-indenteur Hysitron PI 85L (*partie IV-3.2.1*), mais les écarts de déplacement entre les courbes des différents cycles sont tout de même très faibles, de l'ordre de 50 nm au maximum.

Les courbes forces-déplacement de tous les essais ont été corrigé de l'indentation en soustrayant la courbe d'un essai d'indentation réalisé sur le matériau massif à proximité de l'éprouvette, comme décrit dans la *partie III-3.3*. Toutes les courbes présentent une allure quasi-linéaire jusqu'à la rupture (*Figure IV-36*).

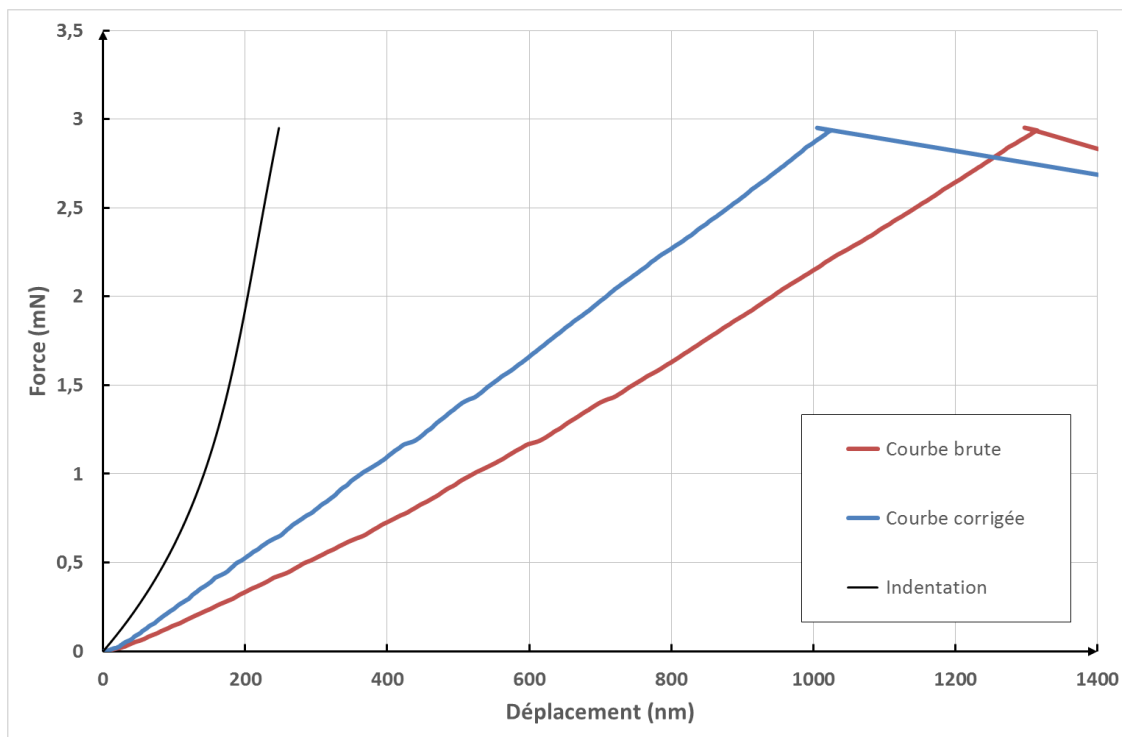


Figure IV-36 : Courbes force-déplacement d'un essai de flexion sur UO_2^{dc} irradié à 34,1 GWj/tU, la pointe utilisée est de type *Cube Corner*. Courbe brute : obtenue pendant l'essai de flexion. (Courbe d'indentation) : obtenue par un essai d'indentation sur le matériau massif à côté de l'éprouvette, la charge imposée correspond à la force à rupture mesurée lors de l'essai de flexion. Courbe corrigée : obtenue par soustraction de la courbe brute par celle d'indentation.

IV-3.3.2. Résultats : contrainte à rupture σ_R

■ *Fractographie*

Des éprouvettes non-entallées et orientées selon les familles de plans cristallographiques {100}, {110} et {111} ont été testées. Comme sur le combustible UO_2^{st} vierge, les faciès de rupture observés au MEB sont caractéristiques de ruptures fragiles. De plus, ils ont une morphologie qui varie selon l'orientation cristalline de l'éprouvette. Les faciès des différentes orientations cristallines sont étudiés et comparés.

Les surfaces de rupture des plans {100} sont légèrement rugueuses, mais également pas parfaitement droites et perpendiculaires à l'axe de la poutre (*Figure IV-37*). La rupture ne s'est donc pas faite exactement suivant des plans de type {100}. L'observation des projections stéréographiques associées à l'orientation cristalline des grains visés ne permet pas de mettre en évidence un plan cristallin particulier vers lesquelles la rupture aurait pu dévier.

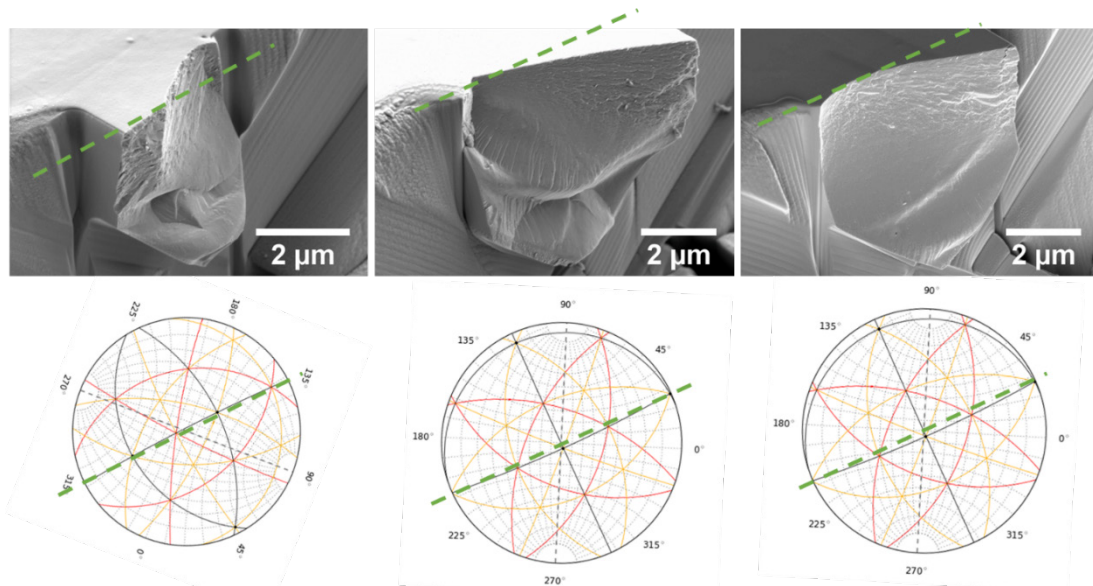


Figure IV-37 : Images MEB de faciès de rupture d'éprouvettes non-entallées, dans le combustible UO_2 irradié, orientées pour solliciter un plan de type $\{100\}$ repéré par des pointillées verts. La projection stéréographique associée (pour une vue de dessus), est donnée sous chaque image MEB. Les courbes rouges correspondent aux projetés des plans $\{111\}$, les jaunes aux $\{110\}$ et les noires aux $\{100\}$.

Les éprouvettes orientées selon des plans de types $\{110\}$ présentent parfois des faciès de rupture anguleux (Figure IV-38), mais ceux-ci ne sont cependant pas observés dans tous les cas : sur une éprouvette, le faciès est très net et lisse dans la partie supérieure (Figure IV-38 – à droite). Pour les faciès anguleux deux surfaces de rupture se rejoignent et forment un angle, elles sont légèrement rugueuses et sont particulièrement accidentées dans la partie inférieure de la poutre. Les projections stéréographiques associées pourraient faire penser à une déviation de la rupture vers des plans $\{111\}$.

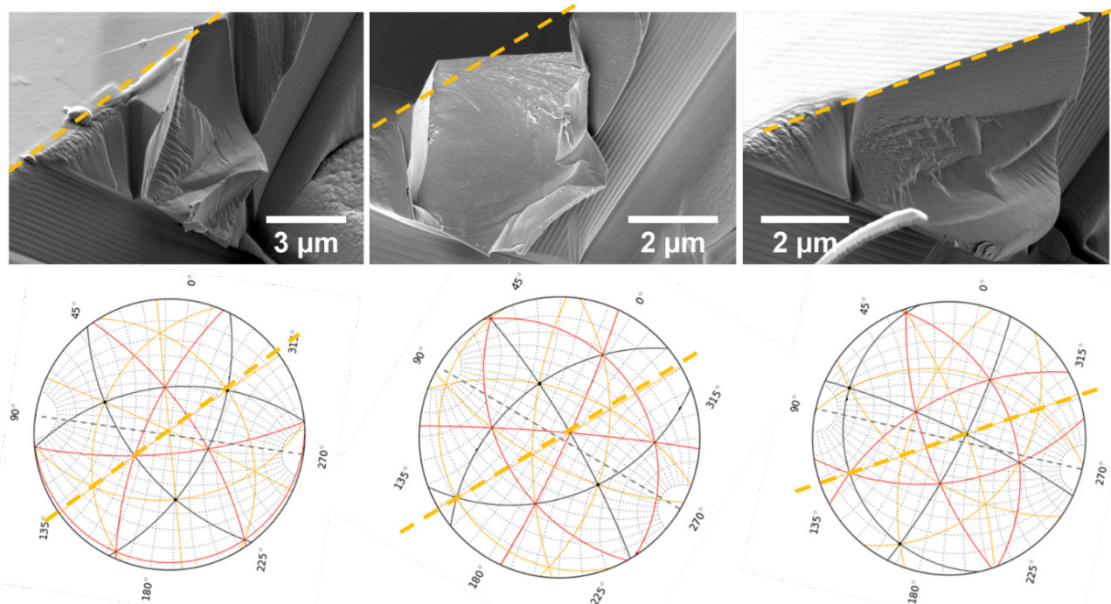


Figure IV-38 : Images MEB de faciès de rupture d'éprouvettes non-entallées, dans le combustible UO_2 irradié, orientées pour solliciter un plan de type $\{110\}$ repéré par des pointillées jaunes. La projection stéréographique associée (pour une vue de dessus), est donnée sous chaque image MEB. Les courbes rouges correspondent aux projetés des plans $\{111\}$, les jaunes aux $\{110\}$ et les noires aux $\{100\}$.

Afin de déterminer si la formation de ces faciès anguleux est un phénomène répétable, deux autres éprouvettes non-entallées ont été préparées dans le même grain, puis sollicitées en flexion. La rupture semble reproductible dans un même grain, puisque les faciès obtenus sont très similaires au premier cas (Figure IV-39).

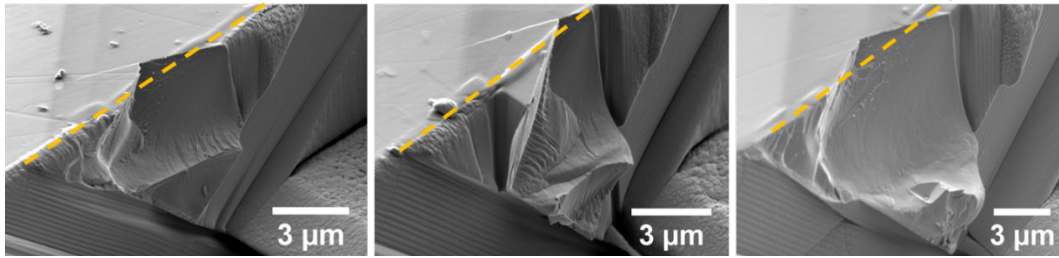


Figure IV-39 : Images MEB de faciès de rupture d'éprouvettes non-entallées, dans le combustible UO_2^{dc} irradié, orientées pour solliciter un plan de type $\{110\}$ repéré par des pointillées jaunes. Ces trois éprouvettes ont été usinées dans le même grain, et présentent toutes un faciès de rupture très similaire.

La projection stéréographique associée au grain étudié montre que des plans $\{111\}$ ont bien une orientation proche de celles des surfaces de rupture (Figure IV-40). L'angle formé par la trace des plans $\{111\}$ en surface, mesuré sur la projection stéréographique, est de 123° tandis que l'angle mesuré en surface entre les faciès formés est compris dans les trois cas entre 125° et 130° . Dans un autre grain, une dernière éprouvette orientée selon $\{110\}$, fabriquée dans un autre grain et qui a rompu avec un faciès anguleux (Figure IV-38 – au milieu), présente aussi un angle qui correspond à la trace de plans $\{111\}$. Dans ce cas, l'angle de rupture, mesuré au MEB, est de 110° et l'angle formé par les plans $\{111\}$, mesuré sur la projection stéréographique, est de 110° également.

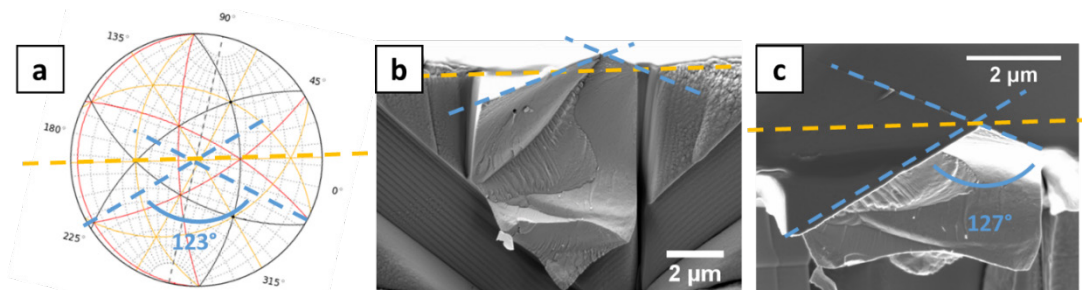


Figure IV-40 : (a) Projection stéréographique (correspondante à une vue de dessus) associée au grain correspondant aux faciès de rupture présentés dans la Figure IV-39. Les courbes rouges correspondent aux projetés des plans $\{111\}$, les jaunes aux $\{110\}$ et les noires aux $\{100\}$. (b) Une image MEB d'un des faciès, vu de face. (c) Une image MEB d'un des faciès, vu de face. Le plan de type $\{110\}$ visé est repéré par des pointillées jaunes, et les plans $\{111\}$ suspectés d'avoir fait dévier la rupture sont repérés par des pointillées bleues.

Deux éprouvettes orientées dans le plan $\{111\}$ ont été testées et montrent un faciès similaire à l' UO_2^{st} vierge, c'est-à-dire net et perpendiculaire à l'axe de la poutre dans la partie haute de la poutre, puis incurvé et accidenté dans la partie basse (Figure IV-41).

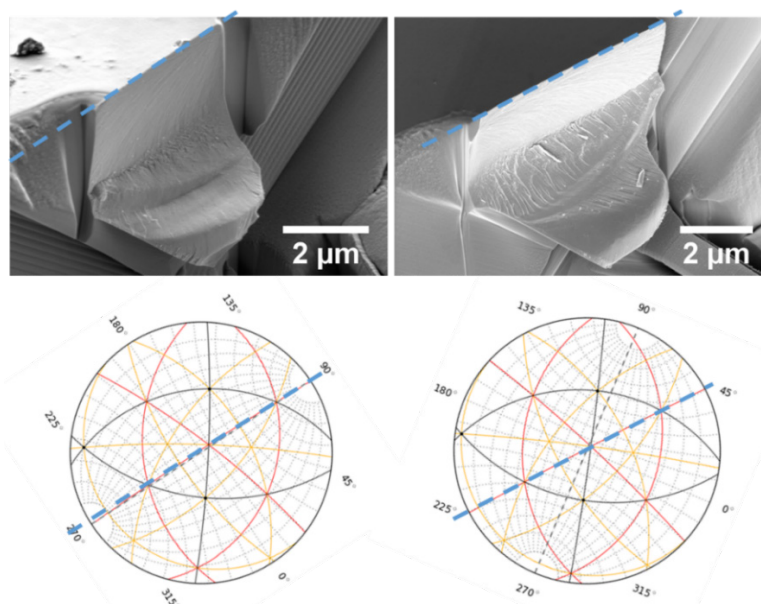


Figure IV-41 : Images MEB de faciès de rupture d'éprouvettes non-entallées, dans le combustible UO_2^{dc} irradié, orientées pour solliciter un plan de type $\{111\}$ repéré par des pointillées bleues. La projection stéréographique associée (pour une vue de dessus), est donnée sous chaque image MEB. Les courbes rouges correspondent aux projetés des plans $\{111\}$, les jaunes aux $\{110\}$ et les noirs plans $\{100\}$.

Sur le combustible UO_2^{dc} irradié, les faciès des différents plans cristallographiques semblent plus caractéristiques et reproductibles que sur le combustible UO_2^{st} vierge. Si il est considéré que c'est dans la partie haute de la poutre qu'il est pertinent d'étudier le faciès car c'est la zone sollicitée en traction, c'est sur les plans $\{111\}$ que les faciès sont les plus lisses et droits. De plus, les faciès des éprouvettes sollicitant les plans $\{110\}$ et $\{100\}$ semblent dévier, respectivement, vers des plans $\{111\}$ et légèrement vers une direction quelconque. Ainsi, il semblerait que les plans $\{111\}$ sont les plus favorables à la rupture.

Les surfaces internes aux grains, révélées par la rupture des poutres, mettent en avant peu ou pas d'effet de l'irradiation sur le matériau à ce stade de l'irradiation et au centre de la pastille. En effet, les surfaces sont plutôt similaires à celles du combustible vierge, et les bulles de gaz ou les précipités de fission sont trop petits pour être visibles au MEB pour les grossissements utilisés. Il semblerait donc que le taux de combustion de ce combustible soit trop faible pour présenter ce type de défauts d'irradiation.

▪ Contraintes mesurées

Les contraintes à rupture calculées par la solution analytique (III-4) pour l' UO_2^{dc} irradié (Tableau IV-9) sont moyennées sur tous les plans et donnent une valeur de $2,79 \pm 0,31$ GPa. Les contraintes à rupture suivent l'ordre de résistance suivant : $\{100\} > \{110\} > \{111\}$, avec respectivement 3,30-3,90 GPa, 2,43-2,62 GPa et 1,95-2,55 GPa. Les mesures présentent une dispersion plus faible que pour l' UO_2 vierge, avec un écart de 0,60 GPa pour $\{100\}$ et $\{111\}$, et un écart entre les valeurs extrêmes sur les mesures dans $\{110\}$ de 0,22 GPa. Etonnamment la différence de résultats pour $\{110\}$ est faible entre un cas où la rupture est bien droite et un cas où le faciès présente un angle.

Tableau IV-9 : Contraintes à rupture en fonction de la famille de plan cristallographique visé, obtenues par essais de flexion d'éprouvettes non-entaillées sur combustible UO_2^{dc} irradié, calculées par une solution analytique. La valeur indiquée est la moyenne des mesures obtenues $\pm$ l'écart-type calculé. L'incertitude issue de la loi de propagation des erreurs est d'environ 10% (partie III-3.4.5).

	Contraintes à rupture mesurées (GPa) en fonction des plans cristallographiques testés			
Méthode de calcul	$\{100\}$	$\{110\}$	$\{111\}$	Moyenne
Formule analytique	3,30 / 3,90	2,43 / 2,55 / 2,62	1,95 / 2,55	2,79 $\pm$ 0,31
Nombre d'essais	2	3	2	7

▪ Rupture sur défauts

Sur le combustible UO_2^{dc} irradié, des défauts de tailles plus importantes à ceux de l' UO_2 vierge ont été testés par deux éprouvettes (Figure IV-42). Si ces défauts sont considérés comme sphériques, leur rayon approximatif mesuré sur le faciès de rupture de l'éprouvette est de 0,7 μm et 3,0 μm respectivement pour les défauts 1 et 2.

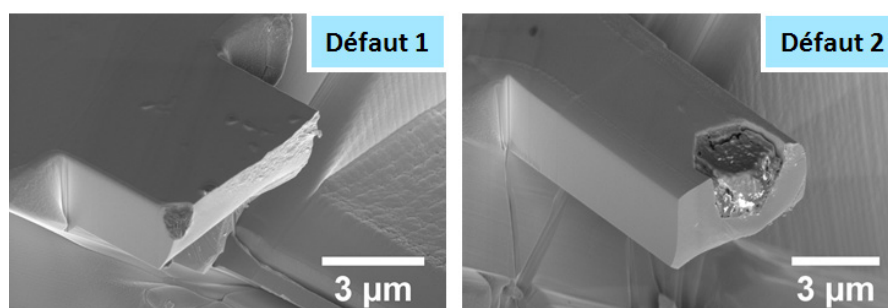


Figure IV-42 : Images MEB de faciès de rupture sur défaut pour des éprouvettes non-entaillées d'un combustible UO_2^{dc} irradié : la rupture n'a pas eu lieu à l'encastrement de la poutre mais sur un défaut.

Les contraintes entraînant la rupture pour ces éprouvettes sont de 1,62 GPa et 0,82 GPa (*Tableau IV-10*), contre une moyenne de 2,79 GPa pour les éprouvettes sans défaut apparent. Ces valeurs sont plus basses que pour les éprouvettes avec défaut dans l' UO_2^{st} vierge (*Tableau IV-5*), ce qui peut s'expliquer par la taille plus importante des défauts.

Tableau IV-10 : Contraintes à rupture obtenues par essais de flexion d'éprouvettes non-entaillées, avec et sans défaut, sur combustible UO_2^{dc} irradié, calculées par une solution analytique. La valeur indiquée est la moyenne des valeurs obtenues sur les différentes orientations $\pm$ l'écart-type calculé. L'incertitude issue de la loi de propagation des erreurs est d'environ 10% (partie III-3.4.5).

	Contraintes à rupture mesurées (GPa)		
Méthode de calcul	Avec défaut 1	Avec défaut 2	Moyenne Sans défaut
Formule analytique	1,62	0,82	$2,79 \pm 0,31$
Nombre d'essais	1	1	7

IV-3.3.3. Résultats : ténacité K_{IC} et taux de libération d'énergie critique G_c

Une dizaine d'éprouvettes entaillées ont été préparées dans l' UO_2^{dc} irradié, réparties dans les trois orientations cristallines étudiées. Cette fois, les faciès de rupture sont similaires d'une orientation à une autre : la rupture est restée perpendiculaire à l'axe de la poutre, dans le plan de l'entaille et les effets de « *cantilever curl* » sont très peu visibles (*Figure IV-43*).

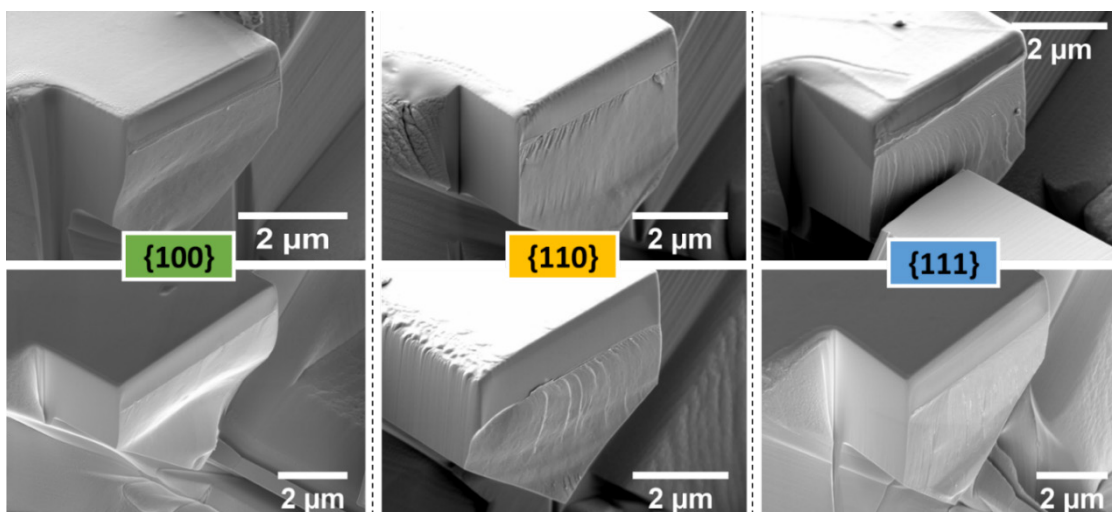


Figure IV-43 : Images MEB de surface de rupture de micro-éprouvettes entaillées, fabriquées dans le combustible UO_2^{dc} irradié, en fonction des plans cristallins visés. Les faciès sont lisses et nets, indiquant une rupture fragile des éprouvettes.

La valeur de ténacité moyennée sur les trois types de plans est de $1,56 \pm 0,14 \text{ MPa.m}^{0,5}$. Dans les orientations {100}, {110} et {111}, les valeurs extrêmes de K_{IC} mesurées sont respectivement de 1,22-1,64 $\text{MPa.m}^{0,5}$, 1,63-1,80 $\text{MPa.m}^{0,5}$ et 1,48-1,67 $\text{MPa.m}^{0,5}$. Au vu des incertitudes de mesure et de la dispersion des résultats, encore une fois, les plans {111} semblent les plus faibles, et les plans {100} et {110} sont difficilement dissociables (*Tableau IV-11*).

Tableau IV-11 : Résultats de ténacité K_{Ic} et de taux critique de libération d'énergie G_c , obtenus par un calcul *FEM* anisotrope, sur différentes familles de plans cristallographiques, sur combustible UO_2^{dc} irradié. La valeur indiquée est la moyenne des mesures obtenues $\pm$ l'écart-type calculé sur ces mesures. L'incertitude issue de la loi de propagation des erreurs est d'environ 10% sur K_{Ic} et 20% sur G_c (partie III-3.4.5).

	Ténacité mesurée en fonction des plans cristallographiques testés							
	{100}		{110}		{111}		Moyenne	
Méthode de calcul	K_{Ic} (MPa.m ^{0.5})	G_c (J.m ⁻²)	K_{Ic} (MPa.m ^{0.5})	G_c (J.m ⁻²)	K_{Ic} (MPa.m ^{0.5})	G_c (J.m ⁻²)	K_{Ic} (MPa.m ^{0.5})	G_c (J.m ⁻²)
<i>FEM anisotrope</i>	1,48 / 1,63 / 1,67	8,3 / 10,0 / 10,5	1,63 / 1,80	11,1 / 13,5	1,22 / 1,29 / 1,34 / 1,64	6,2 / 6,9 / 7,4 / 11,1	1,56 $\pm$ 0,14	9,9 $\pm$ 1,7
Nombre d'essais	3		2		4		9	

IV-3.3.4. Résultats : module de Young E

Les modules de Young, mesurés par comparaison de la flèche de la poutre avec la flèche modélisée par éléments finis (*partie III-3.4.4*), sont cohérents avec les directions sollicitées. En effet, l'ordre de rigidité obtenu est en accord avec la théorie : $E_{\langle 100 \rangle} > E_{\langle 110 \rangle} > E_{\langle 111 \rangle}$; les valeurs mesurées étant respectivement autour de 240 GPa, 180 GPa et 135 GPa, contre des valeurs théoriques, de 338 GPa, 199 GPa et 175 GPa (*Tableau IV-12*). Ces modules théoriques ont cependant été calculés pour l' UO_2 vierge non-dopé, car aucune donnée n'est disponible sur l'influence de l'irradiation et du dopage sur les modules d'élasticité anisotropes.

Les éprouvettes entaillées et non-entaillées donnent des résultats dans la même gamme de valeurs, avec en moyenne des valeurs supérieures mesurées sur les éprouvettes non-entaillées. Il faut noter l'écart très important des mesures ici : 181 GPa d'écart maximum pour {100}, 99 GPa pour {110} et 51 GPa pour {111}.

Tableau IV-12 : Résultats des calculs de modules de Young, sur combustible UO_2^{dc} irradié, déterminés par un calcul isotrope par la méthode des éléments finis. La valeur indiquée est la moyenne des mesures obtenues $\pm$ l'écart-type calculé sur ces mesures. Le module était un paramètre ajusté en comparant la flèche calculée numériquement et la flèche mesurée expérimentalement. * : le module théorique est celui de l' UO_2 vierge, l'influence de l'irradiation sur les modules d'élasticité anisotrope n'étant pas connue.

		Modules de Young E en fonction des plans cristallographiques testés (GPa)			
Méthode de calcul	Type de poutre	{100}	{110}	{111}	Moyenne
<i>FEM isotrope</i>	Entaillée ¹	275 / 185 / 260	232 / 174	126 / 134 / 120 / 123	190 $\pm$ 32
	Non-entaillée ²	224 / 366	176 / 133 / 202	134 / 171	202 $\pm$ 45
Théorique* (III-16)		338	199	175	237
Nombre d'essais	¹ / ²	3 / 2	2 / 3	4 / 2	9 / 7

IV-3.3.5. Résultats : essais sur joints de grains

▪ *Eprouvettes non-entaillées*

Pour rappel, sur UO_2^{st} vierge, les essais sur joints de grains n'ont pas pu être réalisés correctement avec des éprouvettes entaillées, mais ont donné des résultats satisfaisants pour les poutres non-entaillées. Ainsi, sur combustible UO_2^{dc} irradié, il a été choisi de commencer par des essais de flexions d'éprouvettes non-entaillées.

Les joints de grains ont été positionnées à peu près perpendiculairement à l'axe de la poutre (*Figure IV-44*), puis les éprouvettes ont été fléchies jusqu'à rupture. Pour chaque essai, la rupture a suivi le joint de grains, même si il n'était pas positionné là où la contrainte est la plus importante, c'est-à-dire à sa base. De plus, ces surfaces

sont très différentes des essais dans les grains sur UO_2^{dc} irradié et UO_2^{st} vierge, mais aussi différentes des essais sur joints de grains dans l' UO_2^{st} vierge : elles présentent en effet de nombreux petits défauts, répartis de manière homogène sur la surface. Ces défauts ont une forme sphérique, avec un rayon pouvant aller jusqu'à environ 100 nm. Ce sont probablement des bulles de gaz et des précipités métalliques de produits de fission, qui ne sont pourtant jamais visibles sur les faciès de rupture des micro-éprouvettes obtenus dans les grains (*partie IV-3.3.2*).

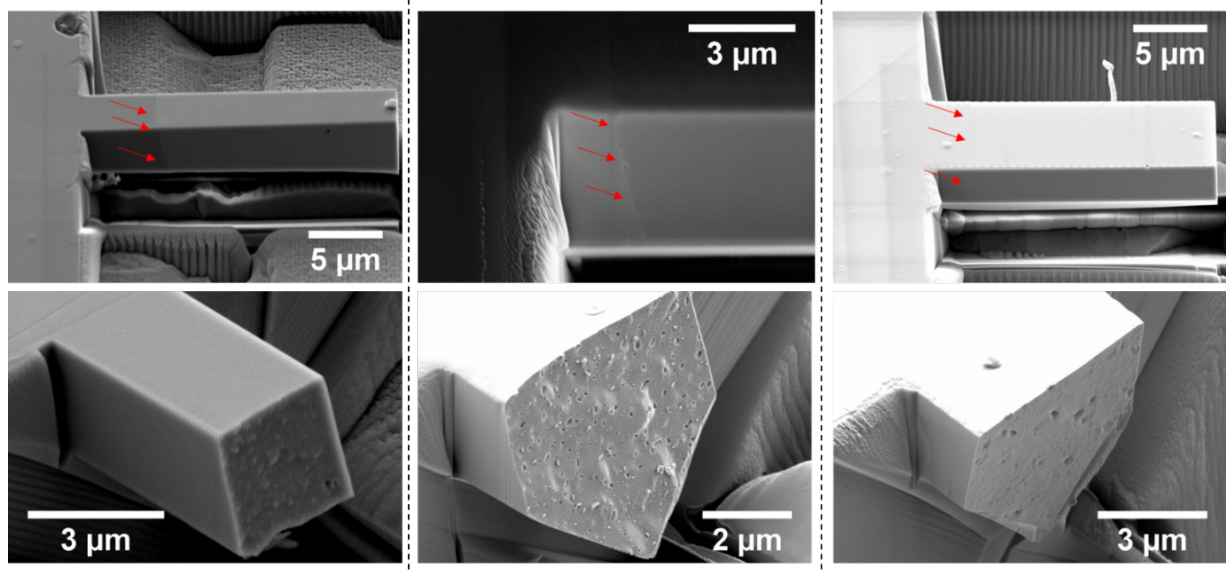


Figure IV-44 : Images MEB des poutres non-entaillées pour mesure de σ_R sur joints de grains de combustible UO_2^{dc} irradié. (En haut) Image de côté de la poutre, montrant le positionnement du joint de grains dans l'éprouvette, pointé par les flèches rouges. (En bas) Image correspondante, du faciès de rupture de la même éprouvette et parsemée de défauts d'irradiation : précipités et bulles. La comparaison des deux images montre que la rupture suit parfaitement la forme du joint.

Les valeurs de contrainte à rupture mesurées sur ces joints de grains sont cette fois significativement plus faibles que les valeurs intragranulaires : $1,26 \pm 0,46$ GPa en moyenne sur les joints de grains, contre $2,79 \pm 0,31$ GPa dans les grains (*Tableau IV-13*). Ces valeurs sont cohérentes avec les faciès observés : une répartition homogène de défauts sur les joints de grains entraîne une diminution significative de σ_R , ici environ la moitié de la valeur des essais intragranulaires.

Tableau IV-13 : Contraintes à rupture obtenues par essais de flexion d'éprouvettes non-entaillées, avec défaut, sans défaut et sur joint de grains, sur combustible UO_2^{dc} irradié, calculées par la méthode des éléments finis prenant en compte l'encastrement non idéal. La valeur indiquée est la moyenne des mesures obtenues $\pm$ l'écart-type calculé. L'incertitude issue de la loi de propagation des erreurs est d'environ 10%.

	Contraintes à rupture mesurées (GPa)		
Méthode de calcul	Valeurs Avec défauts	Moyenne Sans défaut	Moyenne Joint de grains
Eléments finis	0,82 / 1,62	$2,79 \pm 0,31$	$1,26 \pm 0,46$
Nombre d'essais	2	7	3

▪ *Eprouvettes entaillées*

Les essais de flexion d'éprouvettes non-entaillées ont montré une résistance diminuée des joints de grains sur le combustible UO_2^{dc} irradié. Il paraissait donc envisageable que pour un essai entaillé sur un joint de grain, contrairement à l' UO_2^{st} vierge, la rupture puisse suivre le joint de grains visé.

Trois éprouvettes ont donc été préparées dans les mêmes conditions que précédemment, sauf qu'une entaille a été apposée durant une étape intermédiaire de fabrication. Le but était que l'entaille débouche sur le joint de grain. Cependant, pendant l'étape de libération, en excavant la matière sous les éprouvettes, les poutres se courbent systématiquement vers le haut, et se mettent en courbure inversée par rapport à celle générée par la flexion (*Figure IV-45 - pointillés bleus*). La partie basse est alors en traction, et pendant les dernières étapes de

polissage à faible courant ionique, des fissures apparaissent systématiquement le long du joint de grains (Figure IV-45 – flèches rouges). Une autre fissure est parfois observée ailleurs dans la poutre (Figure IV-45 – flèches bleues). De telles éprouvettes ne sont pas exploitables.

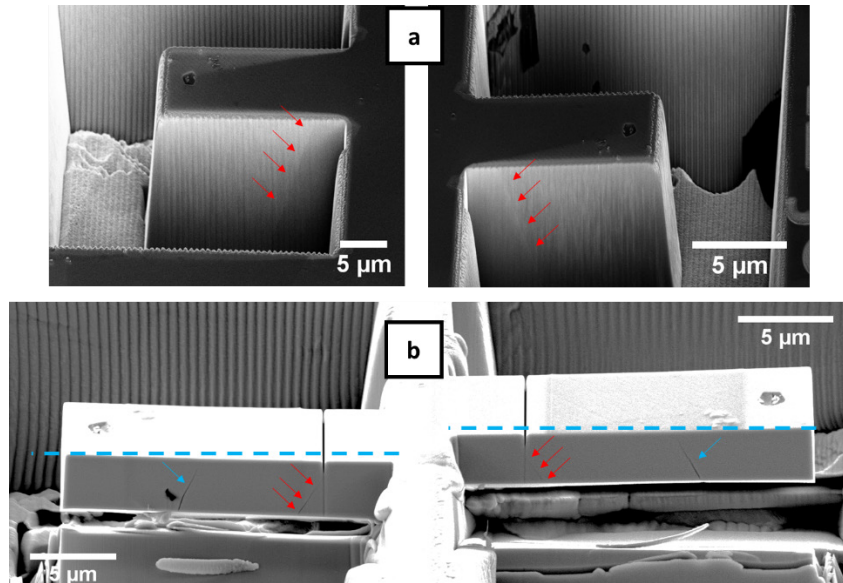


Figure IV-45 : Images MEB d'une poutre entaillée pour mesure de ténacité sur joints de grains de combustible UO_2^{dc} irradié. (En haut) : Images de côté de la poutre, pendant une étape intermédiaire de fabrication, montrant le positionnement du joint de grains dans l'éprouvette, pointé par les flèches rouges. (En bas) : Images correspondantes, de la même éprouvette, après les étapes de finition. La poutre se relève (pointillés bleus), et la mise en traction de la partie basse génère des fissures : les flèches rouges montrent la fissure qui suit le joint de grains, les flèches bleues pointent une fissure formée dans une autre zone de la poutre.

Ces éprouvettes ont quand même été rompues par flexion : la rupture se produit pour des charges extrêmement faibles, dès le contact avec la pointe du nano-indenteur. Les faciès générés (Figure IV-46) sont très similaires à ceux des éprouvettes non-entaillées sur joints de grains (Figure IV-44), exhibant une surface criblée de petits défauts, et montrant que la fissure générée lors de l'usinage se forme bien sur le joint de grains.

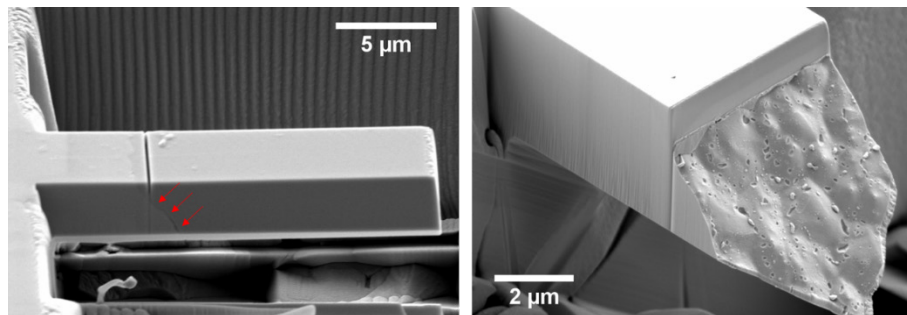


Figure IV-46 : Images MEB d'une poutre entaillée sur joint de grains de combustible UO_2^{dc} irradié. (A gauche) : avant flexion et rupture de la poutre. Une fissure est visible sur le joint de grains, et est montrée par des flèches rouges. (A droite) : après flexion, le faciès de rupture est très similaire aux essais non-entaillés sur joints, démontrant que la fissure était bien le long du joint de grains.

IV-3.4. Discussions

IV-3.4.1. Comparaison avec d'autres méthodes de détermination de σ_R et K_{IC}

Pour les deux échantillons étudiés, vierge et irradié, aucun signe de plasticité n'a été observé, que ce soit sur les images MEB des essais cycliques de charges-décharges, sur les courbes force-déplacement des essais de flexion ou bien sur les faciès de rupture : la rupture des éprouvettes semble toujours fragile.

Les valeurs moyennes de la ténacité K_{IC} et de la contrainte à rupture σ_R sont peu différentes d'un échantillon à l'autre, mais semblent légèrement plus élevées pour l'échantillon d' UO_2^{st} vierge que pour l'échantillon UO_2^{dc} irradié (Tableau IV-14). Cependant, au vu de la dispersion des résultats, mais aussi parce que le système d'indentation est différent d'un échantillon à l'autre, il est difficile de certifier que cette différence est significative.

▪ Ténacité

Les ténacités mesurées par flexion d'échantillons macroscopiques reportées dans la littérature pour un UO_2 vierge sont comprises entre $1,4 \pm 0,15 \text{ MPa.m}^{0,5}$ et $1,8 \pm 0,2 \text{ MPa.m}^{0,5}$ [12]. Les résultats de flexion de micro-éprouvettes sur UO_2^{st} vierge, de $1,86 \text{ MPa.m}^{0,5}$ en moyenne (*Tableau IV-14*), sont donc proches des valeurs obtenues à l'échelle macroscopique.

Par contre, les énergies de surface γ_s issues de simulations atomistiques ou de mesures d'équilibres multi-phases, ne sont pas en accord avec les valeurs de taux critiques de libération d'énergie G_c mesurées ici. En théorie, G_c vaut deux fois γ_s : c'est l'énergie nécessaire pour créer deux surfaces. Dans la littérature, γ_s dépend de l'orientation cristalline, mais l'ordre de grandeur est de $1 - 2 \text{ J.m}^{-2}$ (*Tableau IV-2*). Dans la présente étude, les énergies de surface moyennes des plans cristallins sont comprises entre 4 J.m^{-2} et 8 J.m^{-2} . Ces valeurs sont donc environ quatre fois plus élevées. Cette différence entre la grandeur mécanique et la grandeur théorique d'énergie de surface a déjà observée sur l' UO_2 [178]. La grandeur mécanique est connue pour être plus élevée, car elle inclue des processus de plasticité, même très locaux pour les matériaux fragiles, qui dissipent de l'énergie. L'ordre de résistance des différents plans cristallin cependant, est globalement cohérent avec les valeurs d'énergies de surface de la littérature, qui prévoit un plan {111} plus fragile que les plans {110} et {100}.

Tableau IV-14 : Récapitulatif des propriétés à la rupture mesurées sur les échantillons d' UO_2^{st} vierge et d' UO_2^{dc} irradié. Les valeurs indiquées sont les moyennes $\pm$ l'écart-type calculés. Dans ce tableau l'écart-type est potentiellement peu représentatif, certaines orientations ne présentant que deux résultats.

	Propriétés en rupture moyennes mesurées en fonction des plans cristallographiques testés											
	{100}			{110}			{111}			Moyenne		
Echantillon	σ_R (GPa)	K_{IC} ($\text{MPa.m}^{0,5}$)	G_c (J.m^{-2})	σ_R (GPa)	K_{IC} ($\text{MPa.m}^{0,5}$)	G_c (J.m^{-2})	σ_R (GPa)	K_{IC} ($\text{MPa.m}^{0,5}$)	G_c (J.m^{-2})	σ_R (GPa)	K_{IC} ($\text{MPa.m}^{0,5}$)	G_c (J.m^{-2})
UO_2^{st} vierge	3,44 $\pm 0,70$	2,09 $\pm 0,25$	16,4 $\pm 4,1$	2,79 $\pm 0,99$	1,95 $\pm 0,28$	15,6 $\pm 5,4$	2,66 $\pm 0,08$	1,53 $\pm 0,19$	9,7 $\pm 2,20$	2,96 $\pm 0,63$	1,86 $\pm 0,27$	13,9 $\pm 4,8$
UO_2^{dc} irradié	3,60 $\pm 0,43$	1,59 $\pm 0,10$	9,61 $\pm 1,14$	2,53 $\pm 0,10$	1,72 $\pm 0,12$	12,30 $\pm 1,70$	2,25 $\pm 0,42$	1,37 $\pm 0,19$	7,89 $\pm 2,20$	2,79 $\pm 0,31$	1,56 $\pm 0,14$	9,93 $\pm 1,68$

▪ Contrainte à rupture

Les contraintes à rupture mesurées à l'échelle macroscopique sont de l'ordre de 100-200 MPa [20], alors que la flexion de micro-éprouvettes donne des valeurs moyennes autour 3,0 GPa (*Tableau IV-14*). Il y a donc environ un facteur 20 entre les deux échelles. Ces résultats ne sont pas aberrants, puisqu'ils restent inférieurs aux contraintes théoriques d'un cristal, estimées par exemple par l'équation (II-1), autour de 23 GPa, ou bien calculée par DFT, entre 16 GPa et 93 GPa selon l'orientation cristalline choisie [172]. De plus, elles sont très cohérentes avec une étude récente de micro-flexion sur du combustible vierge, qui a déterminé des contraintes à rupture autour de 3,3 GPa sur des monocristaux denses et autour de 0,5 GPa pour un combustible polycristallin présentant une forte densité de porosité [167]. Il semblerait donc qu'il y ait un effet d'échelle important qui s'applique à la mesure de contrainte à rupture, comme cela avait déjà été noté sur la zircone cubique. La contrainte à rupture semble également dépendre fortement de la porosité présente, mais aussi de l'orientation cristallographique du grain étudié (*Tableau IV-14*).

▪ Comparaison avec les essais d'indentation

Les essais Vickers montraient un combustible UO_2^{dc} moins tenace qu'un combustible UO_2^{st} , que ce soit à l'état vierge ou à l'état irradié, du moment qu'il n'est pas restructuré. Les essais de flexion de micro-éprouvettes, pour les deux types de combustible donnent des valeurs de ténacité légèrement supérieures à celles obtenues par indentation. Par contre la tendance est cohérente : $1,86 \text{ MPa.m}^{0,5}$ pour l' UO_2^{st} vierge et $1,56 \text{ MPa.m}^{0,5}$ pour l' UO_2^{dc} irradié, contre respectivement $1,5 \text{ MPa.m}^{0,5}$ et $1,1 \text{ MPa.m}^{0,5}$ pour les essais Vickers.

IV-3.4.2. Evaluation de la résistance des joints de grains

La méthode d'indentation permet de mettre en évidence la grande faiblesse des joints de grains, cependant elle ne permet pas d'estimer quantitativement K_{IC} ou σ_R . Par contre, la méthode de flexion de micro-éprouvettes permet d'accéder à une contrainte à rupture de l'interface. Cette démarche permet de confirmer les observations d'indentation, c'est-à-dire qu'à l'état vierge, le combustible présente peu de différence de résistance entre le grain et le joint de grains : la contrainte à rupture moyenne σ_R des grains est de $2,64 \pm 0,69$ GPa, alors qu'elle vaut $2,57 \pm 0,35$ GPa sur des joints de grains. Après une irradiation à un taux de combustion moyen de 34 GWj/tU, les joints de grains semblent devenir moins résistants que les grains, avec une contrainte à rupture moyenne dans les grains de $2,29 \pm 0,58$ GPa contre $1,26 \pm 0,47$ GPa sur des joints. Ici, il y a donc une division par deux de la résistance des joints de grains après irradiation (*Tableau IV-15*).

Tableau IV-15 : Récapitulatif des contraintes en rupture mesurées sur les échantillons d' UO_2^{st} vierge et d' UO_2^{dc} irradié à 34 GWj/tU, en fonction du type de rupture induite : intergranulaire ou intragranulaire.

Echantillon	Contraintes à rupture moyennes mesurées (GPa)	
	Moyenne Dans grain	Moyenne Sur joint de grains
UO_2^{st} vierge	2,64 $\pm 0,69$	2,57 $\pm 0,35$
UO_2^{dc} irradié	2,29 $\pm 0,58$	1,26 $\pm 0,47$

La dispersion des mesures de contraintes à rupture sur les joints de grains n'est pas plus importante que celle des essais dans les grains. Pourtant, la contrainte à rupture σ_R pourrait être influencée par les propriétés du joints de grains et donc par le niveau de désorientation des deux grains qui le composent.

Comme chaque éprouvette a été cartographiée par *EBSD*, la désorientation des grains est connue et peut être mise en regard de la contrainte à rupture mesurée (*Figure IV-47*). Cependant, sur les deux échantillons étudiés, il ne semble pas y avoir de lien entre la désorientation des deux grains et la contrainte à rupture σ_R du joint de grains. Pour l' UO_2^{st} , la gamme de désorientation est élevée : un joint présente une désorientation de 16° , un autre de 32° et un dernier de 42° . Pourtant, aucune tendance ne semble se dégager et σ_R vaut respectivement 2,5 GPa, 2,25 GPa et 2,94 GPa. La dispersion des mesures par la méthode de flexion de micro-éprouvettes étant relativement importante, il faudrait plus de points pour pouvoir établir un lien éventuel entre désorientation et résistance des joints de grains.

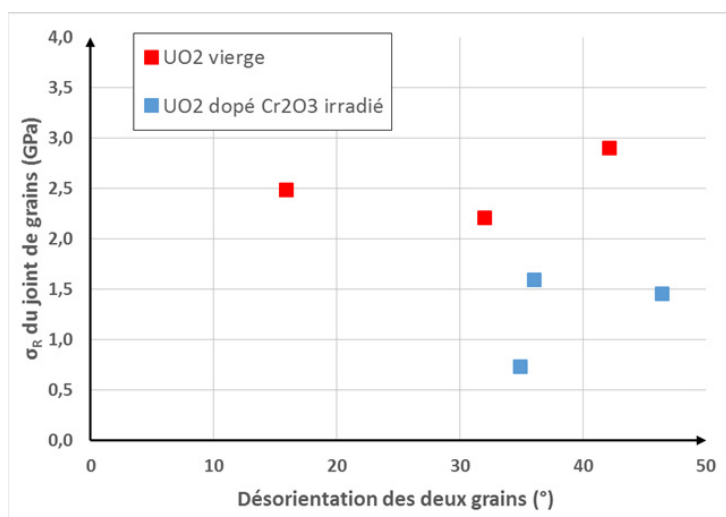


Figure IV-47 : Contrainte à rupture des joints de grains en fonction de la désorientation des deux grains. σ_R est mesuré par flexion de micro-éprouvettes non-entaillées préparées pour solliciter un joint de grains, sur UO_2^{st} vierge et UO_2^{dc} irradié.

IV-3.4.3. Clivage et orientations cristallines

Un autre intérêt de la méthode de micro-flexion est la possibilité d'étudier la résistance mécanique de certains plans cristallins du matériau.

- Fractographie

L'étude des faciès de rupture de l'ensemble des éprouvettes orientées cristallographiquement dans un grain montre que les deux échantillons vierge et irradié présentent la même tendance : les plans {111} semblent les plus propices à la rupture. Tout d'abord parce que les plans {111} semblent plus lisses, droits et perpendiculaires à l'axe des poutres que les autres, que ce soit sur les éprouvettes entaillée ou non-entaillées. Sur ces dernières éprouvettes, les plans {100} présentent certaines surfaces plus rugueuses, particulièrement sur l'échantillon d' UO_2^{dc} irradié. De plus, certaines surfaces ne sont pas exactement perpendiculaires à l'axe de la poutre : dans ces cas, la rupture n'a pas suivi un plan {100}. Pour les plans de type {110}, des déviations du plan de rupture sont fréquemment observées sur les éprouvettes de contrainte. Il semble que, dans certaines conditions de positionnement, la rupture dévie vers les plans de type {111}. Le fait qu'aucune déviation n'est observée sur les éprouvettes sollicitant des plans {100} n'est pas une preuve que ce type de plan est plus favorable à la rupture que {110}. En effet, la proximité entre les plans {110} et {111} est bien plus importante qu'entre {100} et {111} (*Figure III-2*).

Finalement, la fractographie couplée à l'EBSD est une approche uniquement qualitative. De plus, les remarques précédentes ne sont pas systématiquement reproductibles et visibles sur l'ensemble des faciès observés. Cependant, le recoupement de l'ensemble des faciès permet de dégager une tendance et de faire l'hypothèse que les plans {111} sont les plus favorables à la rupture, que l'échantillon soit à petits grains et vierge, ou dopé et irradié.

- Valeurs des propriétés à la rupture

Les grandeurs mesurées confirment les observations précédentes : que ce soit pour K_{IC} , G_C ou σ_R , les valeurs sont en moyenne plus basses pour le plan {111} pour les deux échantillons testés (*Tableau IV-14*). Cette différence est faible, les écarts entre les valeurs se recoupant légèrement avec celles des autres plans, mais semble significative au vu de la dispersion des données et de l'incertitude sur les mesures. Il est cependant difficile de distinguer les plans {100} et {110}, et que ce soit pour la ténacité ou la contrainte à rupture, les écarts entre les essais se recoupent fortement.

Ces résultats sont plutôt cohérents avec la littérature qui attend un plan préférentiel de type {111} pour l' UO_2 . Peu de données sont disponibles pour les autres types de plans, cependant l'ordre attendu pour un cristal cubique à face centrée est $\{111\} < \{110\} < \{100\}$, qui est d'ailleurs confirmé par des études de simulations numériques [172]. Cet ordre de résistance n'est pas incompatible avec les résultats obtenus, mais probablement parce que l'écart entre {100} et {110} est trop faible, et l'incertitude liée à la méthode de micro-flexion trop élevée, il est difficile de le mesurer.

IV-3.4.4. Effets d'échelle

Un fort effet d'échelle est observé sur les contraintes à rupture (*Tableau IV-14*) : le σ_R mesuré sur UO_2^{st} vierge (en moyenne 2,96 GPa) à l'échelle microscopique étant environ 20 fois supérieur à celui mesuré à l'échelle macroscopique (environ 150 MPa [12]). Ce phénomène a déjà été observé par de nombreux auteurs sur des essais de micromécanique sur différents matériaux [80], mais également sur UO_2 vierge [167].

Si l'approche de la réduction de volume dans le modèle de Weibull est appliquée à l' UO_2^{st} vierge, les contraintes à rupture qui en découlent pour des éprouvettes microscopiques est d'environ 1 GPa. Les paramètres utilisés : le module m et la contrainte à rupture moyenne, ont été mesurés par flexion trois points à l'échelle macroscopique sur des barreaux d' UO_2 à une température de 500°C. Les résultats ne sont cependant pas communicables ici. La contrainte à rupture calculée ainsi est donc légèrement plus faible que celle mesurée sur les micro-éprouvettes, mais l'ordre de grandeur n'est pas très éloigné.

D. Frazer *et al.* [167] ont observé sur des micro-éprouvettes que la contrainte mesurée décroît de 3,3 GPa jusqu'à environ 0,3 GPa selon la taille et le nombre de porosités présentes dans la poutre. Dans la présente étude,

certaines éprouvettes ont rompu sur des défauts à des σ_R plus faibles que la moyenne. Pour chacune de ces éprouvettes, un ou plusieurs défauts sont présents sur le faciès de rupture. Il est possible de considérer la taille du défaut qui entraîne la rupture par l'équation (II-22) :

$$a_c = \frac{E G_c}{\pi (\sigma_R)^2} \quad (I-22)$$

Avec celle-ci, il est alors possible de considérer un lien linéaire entre σ_R et $a_c^{-0,5}$; avec le coefficient directeur α qui vaut (IV-2) :

$$\alpha = \sqrt{\frac{E G_c}{\pi}} \quad (IV-2)$$

Sur les faciès de rupture avec défaut de l' UO_2^{st} vierge et l' UO_2^{dc} irradié, si le plus gros défaut est assimilé à une sphère et son rayon a estimé au MEB, il est possible de tracer σ_R en fonction de $a^{-0,5}$ (Figure IV-48).

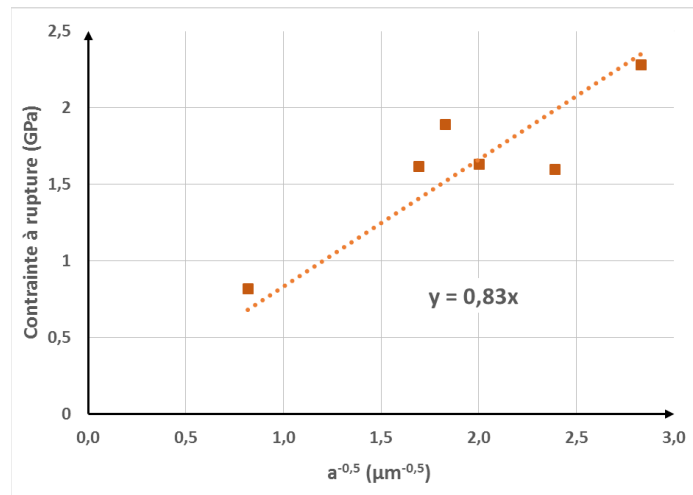


Figure IV-48 : Contrainte à rupture mesurée en fonction de l'inverse de la racine carrée de la taille de défaut a présent dans l'éprouvette. Les micro-échantillons utilisés ont tous rompu avant l'encastrement, sur un défaut visible sur le faciès. Ce défaut est approximé par une sphère, et son rayon a est estimé par image MEB du faciès. Les deux échantillons de combustible, un vierge et un irradié, ont été exploités pour ce graphique.

Peu de points sont tracés et ils sont plutôt dispersés, cependant il est possible d'envisager une relation linéaire entre σ_R et $a^{-0,5}$. Cela indique une plutôt bonne correspondance avec l'équation (II-22). Le coefficient directeur α de la régression linéaire est de $0,8 \cdot 10^6 \text{ Pa}^{0,5} \cdot \text{J}^{0,5} \cdot \text{m}^{-1}$ avec les unités du système international (Figure IV-48).

Si le E macroscopique de l' UO_2 (195 GPa) est utilisé, combiné au G_c de $12 \text{ J} \cdot \text{m}^{-2}$ mesuré et moyenné sur toutes les directions, la valeur résultante de l'équation (IV-2) pour $\alpha_{\text{théo}}$ est de $0,9 \cdot 10^6$, ce qui correspond plutôt bien à l'analyse de la taille des défauts dans les micro-échantillons (Figure IV-48).

Pour les éprouvettes qui ont cassé à l'encastrement, sans défaut particulier visible sur le faciès, la taille de défaut critique a_c calculée avec le coefficient de $0,8 \cdot 10^6$ varie entre 50 nm et 200 nm. Ce résultat semble réaliste, car des défauts d'une telle taille sont parfois visibles au MEB sur les faciès de rupture des micro-échantillons (Figure IV-40). L'utilisation du modèle pour les contraintes à rupture σ_R relevées à l'échelle macroscopique semble également donner des résultats cohérents. En effet, une contrainte de 150 MPa correspondrait à un défaut critique de 30 μm de rayon, des défauts de cette taille ou supérieure étant visibles sur les échantillons étudiés (Figure IV-17 et Figure IV-18).

Par contre, Frazer *et al.* ont obtenu des contraintes à rupture entre 0,3 GPa et 0,5 GPa par flexion de micro-échantillons sur un échantillon d' UO_2 standard [167]. De telles contraintes correspondraient à des valeurs d' a_c de l'ordre de 4 μm , ce qui n'est pas cohérent avec les images MEB disponibles des micro-échantillons, qui incluent des porosités plus petites, de l'ordre de 1 μm pour les plus grosses (Figure IV-3). En revanche, dans ce dernier cas, l'éprouvette réelle présente de nombreux pores répartis, et non pas une seule et unique porosité, ce qui pourrait expliquer en partie cette différence. D'ailleurs, les tests sur joints de grains, pour un combustible

UO₂^{dc} irradié, exhibent des faciès de rupture parsemés de petites bulles (*Figure IV-44*). Dans ce cas précis, la contrainte mesurée est de l'ordre de 1,26 GPa. Si l'approche du défaut critique est appliquée, une telle contrainte serait engendrée par un a_c d'environ 1 μm . Or la taille des bulles, mesurée au MEB, est en moyenne autour de 100 nm, et n'excède pas les 300 nm ; par contre, une forte densité de bulles est visible sur le faciès. De plus ces bulles ont une pression interne, ce qui pourrait également influencer la mesure de contraintes à la rupture.

Finalement, le modèle du défaut critique semble donner des résultats cohérents pour les essais sur micro-éprouvettes présentant une seule porosité. Il explique également assez bien l'effet d'échelle observé. Cependant il n'est plus applicable quand l'éprouvette présente un grand nombre de défauts.

IV-3.4.5. Effets de l'irradiation

▪ *Conséquences sur les propriétés mécaniques*

Tout d'abord, il faut rappeler qu'il n'est pas possible de déduire l'effet de l'irradiation par comparaison directe des deux types de combustibles étudiés. En effet, le combustible UO₂^{dc} irradié présente un dopage au Cr₂O₃, et même si son influence semble faible sur les propriétés mécaniques du combustible, il n'est pas possible de dissocier son effet de celui de l'irradiation.

Il y a peu de traces de l'irradiation visibles sur l'échantillon d'UO₂^{dc} irradié pour les conditions d'imagerie utilisées. Les images MEB ne présentent pas de signes particuliers en surface ou bien sur les faciès de rupture des micro-éprouvettes dans les grains. D'ailleurs, la résistance mesurée est légèrement plus faible que l'UO₂ non irradié, mais cet écart n'est peut-être pas significatif et n'est peut-être pas dû, ou peu, à l'irradiation. Par contre, une grande différence est notée dans les essais sur les joints de grains. L'échantillon irradié présente des faciès de rupture sur joints de grains constellés de petites bulles de gaz et de précipités de produits de fission. Ces défauts ne sont pas visibles sur les images MEB du même matériau avant irradiation (*Figure IV-49 - a*), et sont d'ailleurs repérables sur la surface pour les échantillons irradiés (*Figure IV-49 - b*). Cette fois, la résistance de ces interfaces est significativement plus faible que celle des grains, alors qu'elles étaient quasiment égales sur l'UO₂st vierge. Il est donc fortement probable que la contrainte à rupture σ_R plus faible dans les joints de grains soit due aux défauts observés, induits par l'irradiation. Deux effets peuvent réduire la résistance du joint de grains : d'une part la présence de ces défauts qui concentrent localement les contraintes, d'autre part la pression potentielle dans les bulles [179], qui peut tendre à ouvrir l'interface.

Ainsi, il semblerait qu'à un taux de combustion de 34 GWj/tU et au centre de la pastille, l'irradiation affecte particulièrement les joints de grains, mais encore assez peu les grains. Cette observation est d'ailleurs très cohérente avec les études d'indentation Vickers, qui ont montré une forte décohésion des joints de grains, et ce uniquement après irradiation et avant restructuration des grains sous forme d'HBS.

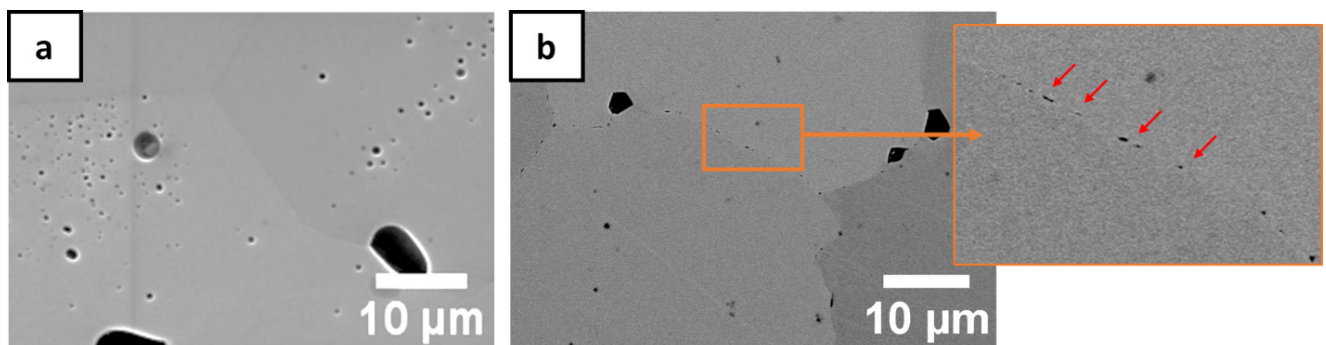


Figure IV-49 : Images MEB de la surface d'un échantillon de combustible UO₂^{dc}. (a) L'échantillon est vierge, et aucune bulle n'est visible sur les joints de grains (C. Sabathier, CEA Cadarache). (b) : L'échantillon a été irradié en REP à 34 GWj/tU, et présente des bulles nanoscopiques visibles au MEB sur les joints de grains.

▪ Eventuelles contraintes résiduelles

Uniquement dans le cas de l'échantillon irradié, des problèmes à la fabrication d'éprouvettes entaillées ont été rapportés (*Figure IV-44*) : les poutres se déforment vers le haut quand les surfaces sont affinées au FIB avec un faible courant ionique. Ce type de déformation est connu des utilisateurs de FIB, et est attribué en général à des contraintes résiduelles dans le matériau.

Ce phénomène a été principalement observé pour des poutres entaillées sur des joints de grains, usinées au centre de la pastille de combustible UO_2^{dc} irradié. Ces déformations pourraient donc être induites par le procédé d'usinage de l'entaille et par exemple par de l'implantation locale d'ions. Pourtant, sur les autres matériaux non-irradiés étudiés, aucune déformation n'avait été observée, même dans le cas d'une éprouvette très fine, plus facilement déformable (*Figure IV-50 - a*). De plus, aucune déformation n'était visible pour les poutres fabriquées autour de joints de grains. Les éprouvettes dans les grains du matériau irradié ne présentent en général pas de déformation non plus. C'est donc la combinaison de l'irradiation, de l'usinage d'une entaille et de la présence d'un joint de grain qui semble poser problème.

Un seul cas de déformation a été rapporté dans un grain, dans une poutre non-entaillée du combustible UO_2^{dc} irradié. Ce cas était particulier, puisque la poutre était très fine, et donc plus facilement déformable (*Figure IV-50 - b*). Pourtant, des poutres plus fines dans l' UO_2^{st} vierge ou dans ZrO_2 (*Figure IV-50 - a*) ne présentaient aucune déformation de ce type. L'explication pourrait donc provenir des défauts d'irradiation (insertion de produits de fission, bulles nanoscopiques) invisibles au MEB pour les grossissements utilisés, qui induiraient des contraintes résiduelles et fléchiraient cette éprouvette à cause de sa taille réduite et donc de sa plus faible raideur.

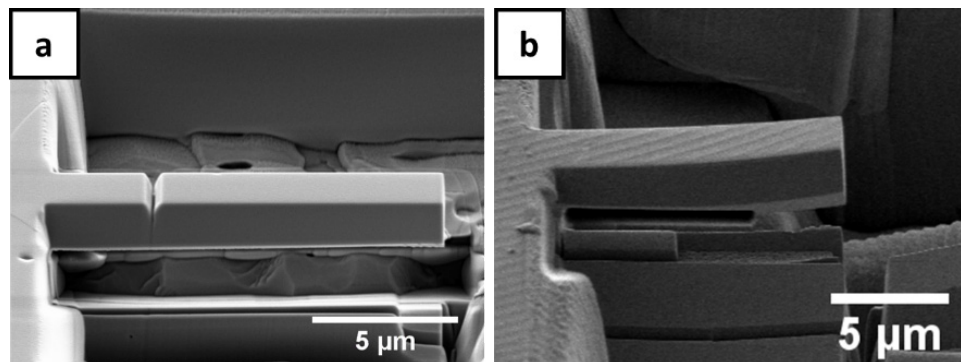


Figure IV-50 : Images MEB de : (a) une poutre entaillée et de taille réduite, usinée sur ZrO_2 ; (b) une éprouvette de taille réduite, non-entaillée dans un grain de combustible UO_2^{dc} irradié, présentant une déformation vers le haut.

Finalement, la déformation des poutres parfois observée sur combustible UO_2^{dc} irradié pourrait être induite par des contraintes résiduelles. Cette déformation étant particulièrement visible quand des bulles et des précipités sont présents dans l'éprouvette, il est raisonnable de penser que ces défauts d'irradiation pourraient être la source de contraintes résiduelles.

IV-3.4.6. Rigidité des éprouvettes

L'ensemble des éprouvettes fabriquées sur combustible donnent des mesures de modules de Young cohérentes avec les valeurs théoriques (*Tableau IV-16*). L'étude du module permet de discriminer les trois orientations visées, avec un ordre de rigidité $E_{\langle 100 \rangle} > E_{\langle 110 \rangle} > E_{\langle 111 \rangle}$ qui est respecté par rapport à la tendance attendue. Les modules ainsi obtenus, moyennés sur les deux échantillons, sont de 280 GPa, 190 GPa et 150 GPa pour respectivement les directions $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ et $\langle 111 \rangle$. Ces valeurs sont donc assez proches des valeurs théoriques de l' UO_2^{st} vierge de 338 GPa, 199 GPa et 175 GPa. L'estimation du module de rigidité est donc bien meilleure que les essais sur zircone cubique (*partie III-3.6.3*). Cette observation n'est pas entièrement comprise, mais pourrait être induite par le fait que des poutres plus longues en proportion (en moyenne ratio L/W de 5 sur UO_2 contre 3 sur ZrO_2), ont été réalisées sur UO_2 .

Les éprouvettes entaillées donnent en général des valeurs de E un peu plus faibles que les non-entaillées. La modélisation numérique utilisée ne prenant pas en compte certaines caractéristiques de l'essai, telles qu'un rayon de fond d'entaille non nul ou bien encore l'implantation ionique, les mesures peuvent en être affectées.

Entre les deux échantillons de combustibles, il semblerait que l' UO_2^{dc} irradié présente, en moyenne, une rigidité légèrement plus faible que l' UO_2^{st} vierge, mais au vu des dispersions et des incertitudes, il n'est pas possible de l'affirmer. De plus, les deux échantillons ont été testés avec des appareils différents.

Dans la littérature, des mesures de module de Young par flexion de micro-éprouvettes ont déjà été réalisées sur UO_2 vierge [167], donnant des valeurs très proches du module théorique quand les éprouvettes sont réalisées dans un monocristal dense. Par contre, le module chute fortement dès lors que des porosités sont présentes. Pourtant, dans la présente étude, les éprouvettes avec une porosité fournissent une mesure de module dans la même gamme de résultats que les éprouvettes sans défaut (*Tableau IV-16*). La différence avec les résultats de Frazer *et al.* [167], vient peut-être de la dispersion homogène des porosités dans leurs éprouvettes, qui pouvait réduire plus le module E de la poutre que la présence d'une unique porosité.

Tableau IV-16 : Récapitulatif des modules de Young mesurés par flexion, sur les échantillons d' UO_2^{st} vierge et d' UO_2^{dc} irradié, en fonction du type de d'éprouvettes sollicitées : entaillées ou non-entaillées.

Echantillon	Type de poutre	Modules de Young E en fonction des plans cristallographiques testés (GPa)				
		{100}	{110}	{111}	Moyenne	Avec défaut
UO_2 vierge	Entaillée	282 ± 40	175 ± 29	169	201 ± 61	-
	Non-entaillée	321 ± 5	218 ± 18	151 ± 5	213 ± 65	189 ± 51
UO_2^{dc} irradié	Entaillée	240 ± 48	203 ± 41	126 ± 6	181 ± 61	-
	Non-entaillée	283 ± 74	170 ± 35	153 ± 26	208 ± 77	248 ± 17
Théorique (III-16)		338	199	175	237	-

IV-3.5. Bilan

La transposition des techniques de fabrication, de sollicitation et de mesure des micro-éprouvettes de flexion sur le combustible vierge et irradié, mais aussi sur les équipements spécifiques qui leur sont dédiés, s'est donc déroulée de manière satisfaisante. L'étude a permis de démontrer la faisabilité des essais de flexion de micro-éprouvettes fabriquées au *FIB* sur des combustibles irradiés.

Il faut cependant noter que le nano-indenteur *in situ* utilisé pour cela présente un mode de fonctionnement qui n'est pas parfaitement adapté. Si la pièce de référence n'est pas au contact de l'échantillon, la rigidité du montage d'indentation n'est pas optimale. D'une part, cela montre des écarts à la linéarité sur les essais cycliques de charges-décharges qui sont très probablement des artefacts. Si des échantillons qui sont susceptibles de présenter de la plasticité sont testés, par exemple à cause d'une microporosité telle que dans les zones *HBS*, elle pourrait être masquée par la souplesse du nano-indenteur. D'autre part, cela génère probablement des imprécisions sur les courbes force-déplacement, et participe donc à la dispersion des modules de Young mesurés. Idéalement, il faudrait donc améliorer la rigidité du montage avant de réaliser de nouveaux essais.

Les données obtenues sur la résistance à la rupture de l' UO_2 sont utiles pour la modélisation numérique du comportement du combustible et sont tout à fait inédites pour l' UO_2 irradié. Toutes les mesures ont été effectuées à température ambiante, et pour celle-ci, le combustible présente un comportement fragile.

L'étude de l'orientation cristalline de l' UO_2^{st} vierge et l' UO_2^{dc} irradié met en évidence que les plans de type de {111} sont moins résistants que les plans {100} et {110}. De plus, la mesure de la rigidité en flexion des micro-éprouvettes, présente certes des résultats assez dispersés, mais donne une estimation correcte pour les différentes orientations cristallines testées et pourrait donc être une méthode alternative à la nano-indentation pour mesurer des modules de Young locaux sur le combustible irradié.

Si les deux échantillons de combustible sont comparés, l'influence de l'irradiation semble relativement faible. Il n'y a aucune indication particulière de l'irradiation dans les grains, par contre des bulles de gaz et/ou des précipités

de fission semblent réduire considérablement la résistance des joints de grains. L'irradiation semble également générer des contraintes résiduelles dans le matériau, ce qui peut gêner la fabrication des éprouvettes au *FIB*.

La réduction de la taille des éprouvettes entraîne une modification de l'influence de certains paramètres par rapport à l'échelle macroscopique, tel que par exemple l'orientation cristalline ou le taux de porosité. Cependant, la ténacité ne semble pas soumise à d'éventuels effets d'échelle, contrairement à la contrainte à rupture. Pour cette dernière, il a été vu que l'effet d'échelle s'explique notamment par la diminution du volume sollicité, et donc par la diminution en taille et en nombre des défauts présents dans les micro-éprouvettes. Ainsi, les résultats de contrainte obtenus doivent être pris avec précaution et toujours mis en regard du volume sondé. Par exemple, ils ne peuvent pas être utilisés tels quels dans la plateforme PLEIADES qui modélise le comportement du combustible à l'échelle macroscopique. Pour cela, les résultats obtenus dans le cadre de ce travail de thèse pourraient être utiles pour une analyse de la rupture du combustible par un critère de rupture qui couple la ténacité et la contrainte à rupture [180], qui peut être éventuellement complétée par la prise en compte des défauts présents [181]. Ce type d'approche a déjà été utilisé dans le passé, mais avec des éprouvettes macroscopiques usinées dans du combustible vierge [13].

IV-4. Conclusion

L'étude bibliographique montre que les propriétés mécaniques, et plus spécialement les propriétés à la rupture de l' UO_2 vierge, sont relativement bien connues, mais elle met en évidence un manque de données sur le combustible irradié.

L'analyse des essais d'indentation Vickers sur différents types de combustible et à différents taux de combustion donne accès à des informations très utiles : l'évolution de la fissuration avec l'irradiation ou encore la différence de comportement entre un combustible à petits grains ($10\ \mu\text{m}$) et un combustible à gros grains ($60\ \mu\text{m}$). Cependant, cette technique présente des limites, notamment sur l'analyse qui permet de calculer la ténacité. En effet, la fissuration générée est largement influencée par la présence de joints de grains. Ceux-ci étant fragilisés avec l'irradiation, les mesures deviennent impossibles pour certains échantillons irradiés. En plus, les hypothèses de calculs basées sur des morphologies précises de fissures sont difficilement vérifiables, et deviennent discutables dans les zones périphériques où l'irradiation a restructuré le combustible.

La méthode de flexion de micro-éprouvettes permet de compléter en partie les données d'indentation. Elle donne accès à des mesures de la ténacité intragranulaire du matériau, tout comme l'indentation. Cependant, la micro-flexion permet aussi de mesurer la contrainte à rupture, et donne également une estimation du module élastique local. Elle mesure aussi des propriétés plus ponctuelles, comme les propriétés à la rupture de certains plans cristallins, mais aussi de joints de grains. Les modes de sollicitation des micro-éprouvettes sont mieux définies que pour l'indentation, améliorant ainsi la précision des données obtenues, par contre elles sont peut être également soumises à des effets d'implantation ionique, difficilement quantifiables.

CHAPITRE V

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

Ce chapitre conclut le document et dresse un bilan global de l'étude, qui introduit les perspectives envisagées pour les méthodes de caractérisation étudiées dans le cadre de ce travail de thèse.

V-1. Nano-indentation

L'étude de la nano-indentation comme méthode d'évaluation des propriétés à la rupture d'un matériau fragile a mené notamment à l'analyse de la fissuration induite dans de la zircone cubique poly- et monocristalline, mais aussi dans divers combustibles vierges ou irradiés à différents taux de combustion.

Les points forts de cette méthode sont multiples, mais sa principale qualité est sa simplicité à être mise en œuvre. Elle permet de générer rapidement des résultats, dans différentes zones de l'échantillon et est ainsi très efficace pour faire des mesures comparatives de fissuration. Elle paraît donc particulièrement adaptée à l'étude du combustible irradié, car c'est un matériau fracturé, complexe à manipuler et aussi parce sa microstructure évolue radialement dans la pastille entre le centre et la périphérie. L'indentation est donc très appropriée pour la réalisation de profils radiaux sur les coupes polies des pastilles de combustibles.

Par contre, l'analyse des fissures de surface pour remonter à une valeur de ténacité est délicate. Elle dépend notamment d'hypothèses qui sont difficilement vérifiables sur l'ensemble des essais. La tomographie *FIB* montre d'ailleurs que la morphologie des fissures sous les empreintes observées est dans un mode intermédiaire aux modes théoriques usuellement supposés. La fissuration qui en découle semble d'ailleurs largement influencée par la microstructure locale, que ce soit les joints de grains, l'orientation cristalline ou encore la porosité. Ainsi, idéalement, la méthode d'indentation devrait être calibrée par des essais conventionnels de mesure de ténacité. Dans le cas des combustibles UO_2 irradiés les joints de grains semblent particulièrement faibles et rendent les mesures de ténacité par indentation impossibles à la charge testée de 750 mN et quand les grains sont de l'ordre de 10 μm en moyenne, comme c'est le cas pour l' UO_2 standard. Même si cette faiblesse est facilement mise en évidence par indentation, la technique ne permet pas de l'évaluer quantitativement, le volume sondé doit donc rester dans le grain.

Pour compléter l'étude de la nano-indentation comme outil de mesure de la ténacité du combustible, il faudrait continuer de travailler sur la réduction de l'échelle des essais. Pour cela la pointe Berkovich est plus adaptée que la pointe Vickers. Idéalement, il faudrait trouver une charge qui permet d'inclure l'empreinte et les fissures générées dans un seul grain, afin de s'affranchir de l'influence des joints de grains. Il a été montré que c'est facilement atteignable pour un combustible UO_2 dopé au chrome, mais que cela risque d'être difficilement réalisable sur un combustible standard avec des grains de 10 μm de diamètre en moyenne. Des futurs essais sur de tels combustibles seront tout de même réalisés pour vérifier cela.

Une alternative pour générer des fissures à faibles charges pourrait être l'utilisation d'une pointe *Cube Corner*, plus pointue. Cependant, son utilisation n'est pas forcément une solution idéale, car cette pointe est connue pour générer des bourrelets d'indentation autour des empreintes qui gênent les mesures [112]. De plus, pour des charges à la limite du seuil de fissuration, les morphologies des fissures semblent ne pas être dans une configuration théorique simple. Il faudrait donc étudier par tomographie *FIB* l'évolution de la morphologie des fissures en fonction de la charge appliquée. Cela pourrait permettre de trouver un *optimum* entre la diminution de la charge pour réduire l'influence des joints de grains et l'augmentation de la charge pour générer un système de fissuration bien défini.

V-2. Flexion de micro-éprouvettes

Une étude bibliographique a permis de sélectionner l'essai de micromécanique qui semble *a priori* le plus adapté aux contraintes du combustible irradié et au matériel disponible : la flexion de micro-éprouvettes à section pentagonale, fabriquées au *FIB* et sollicitées par un nano-indenteur. Une première étape de validation sur le matériau modèle de combustible a donné lieu à des protocoles optimisés de fabrication et de mesures.

Cette fois, le mode de chargement de l'éprouvette est bien plus proche d'un essai conventionnel macroscopique de flexion et permet une sollicitation locale en traction qui entraîne la rupture fragile. L'utilisation d'éprouvettes non-entaillées permet la mesure de contraintes à rupture, ce qui était inaccessible par indentation. Finalement, le plus gros avantage de la méthode est sa faculté à pouvoir tester des caractéristiques du matériau jusque-là inexplorées, comme des orientations cristallines spécifiques ou des interfaces telles que les joints de grains. La connaissance de ces paramètres est tout d'abord intéressante dans l'optique d'améliorer les connaissances générales des propriétés des combustibles sous irradiation, mais aussi afin de pouvoir apporter des données nécessaires pour la modélisation de leur comportement.

Contrairement à l'indentation, la mise en œuvre de la méthode est plus complexe et nécessite une longue prise en main : tout d'abord pour la fabrication au *FIB* des éprouvettes, mais aussi pour la sollicitation, délicate et avec une visée qui doit être très précise, opérée par un nano-indenteur. Le principal problème de cette technique est lié à l'utilisation d'ions gallium et aux probables effets qu'ils induisent dans la matière. Il a été vu dans la littérature que l'influence sur la mesure de ténacité peut être très importante selon le matériau étudié. Dans cette étude, la méthode alternative (entaille chevron) qui évite les effets d'implantations ioniques n'a pas aboutie, ne laissant aucun moyen efficace d'évaluer ces effets. Cependant, les résultats obtenus par flexion de micro-éprouvettes sont plutôt cohérents avec des valeurs obtenues par d'autres méthodes sur la zircone cubique ou bien sur le combustible vierge, laissant présager d'un faible effet sur ces céramiques. Ainsi, il est raisonnable de penser que les ions gallium ne devraient influencer que faiblement la mesure sur le combustible irradié.

Afin de poursuivre l'étude, il faudrait idéalement éclaircir plusieurs points. Tout d'abord, bien sûr, il semble important d'évaluer l'influence de l'implantation ionique. Comme montré dans la littérature, ce n'est pas un sujet évident à traiter et seulement quelques pistes à explorer peuvent être proposées. L'utilisation d'un microscope électronique à transmission (MET) sur un échantillon préparé sous une entaille réalisée au *FIB* pourrait permettre d'évaluer la profondeur et la concentration de défauts induits par les ions gallium. L'utilisation d'un *FIB* avec une autre source d'ions, comme de l'hélium ou du xénon, pourrait également aider à cerner l'influence des ions sur la mesure de ténacité. La solution idéale serait de trouver une méthode qui génère une fissure non affectée par l'implantation d'ions. Une fissure de fatigue pourrait faire l'affaire, mais elle est difficile à réaliser dans des matériaux fragiles. Une solution pourrait être de générer une fissure par indentation, puis de fabriquer l'éprouvette autour de celle-ci. De plus, il a été entrevu qu'un autre paramètre semble affecter les mesures, et particulièrement la contrainte à rupture : la porosité, et particulièrement celle répartie de façon homogène dans l'éprouvette. Afin de réaliser des essais dans des zones à forte densité de porosités, telles que dans des combustibles à fort taux de combustion, ou typiquement dans les zones périphériques restructurées en *HBS*, il serait intéressant de modéliser numériquement cette porosité, ainsi que son influence sur l'essai de flexion, notamment en utilisant un maillage adapté de la porosité du matériau [182].

Une des problématiques clé qui sera également étudiée par la suite est le passage entre les grandeurs mesurées et les propriétés du matériau à entrer dans les codes de calcul. Un des points importants est le lien à effectuer entre la contrainte à rupture mesurée localement, l'effet d'échelle associée, et la contrainte critique, globale, entrée dans *ALCYONE*. Pour cela, l'utilisation conjointe des résultats expérimentaux et de la modélisation numérique sera nécessaire, par exemple en modélisant les essais de flexion de micro-éprouvettes numériquement en utilisant le modèle d'endommagement continu d'*ALCYONE*.

En termes d'application, la méthode de flexion de micro-éprouvettes a été utilisée sur un combustible standard, vierge, avec des grains de 10 μm en moyenne, ainsi que sur un combustible dopé au chrome avec des grains de 60 μm en moyenne, irradié à 34 GWj/tU. Pour compléter les données acquises et pouvoir éventuellement conclure sur l'effet de l'irradiation et/ou du dopage au chrome, il faudrait donc réaliser des essais sur un

combustible standard irradié à un taux proche de 34 GWj/tU. Ensuite, pour aller plus loin, il serait intéressant de continuer les mesures sur les deux types de combustible à des taux de combustion plus importants. Elles pourraient alors être confrontées aux mesures d'indentation.

Enfin, des essais plus complexes peuvent aussi être envisagés :

- Dans les zones restructurées en *HBS*, les propriétés mécaniques n'ont été évaluées à ce jour que par indentation et il est important de pouvoir renseigner ces propriétés dans les codes de simulation numérique. Il serait donc intéressant de réaliser des essais de flexion dans ces zones du combustible irradié.
- Afin de confronter les calculs de modélisation numérique et faire le lien entre l'énergie de surface théorique et le taux de libération d'énergie élastique de la mécanique, il pourrait être enrichissant de tester des joints de grains spéciaux à la désorientation connue.
- La connaissance de la résistance mécanique des joints de grains du combustible polycristallin vierge et irradié est très intéressante. Cependant, la fabrication et la sollicitation de ces joints de grains est particulièrement complexe. A ce jour, des mesures de contrainte à rupture ont été effectuées, mais aucune mesure de ténacité par flexion de micro-éprouvettes n'a pu être réalisée dans le combustible. Afin de trouver une solution pour fabriquer une entaille sur un joint de grain, une piste à explorer serait le gravage thermique de l'échantillon. En effet, un traitement thermique adapté peut amener à un creusement de quelques centaines de nanomètres des joints de grains. La caractérisation de leur morphologie, par exemple par microscopie à force atomique (*AFM*), pourrait permettre de connaître l'orientation du joint de grains par rapport à la surface de l'échantillon. De plus, ce gravage pourrait servir de remplaçant de l'entaille *FIB*, donnant accès à une entaille, et donc à la mesure d'une ténacité sur un joint de grains, mais aussi supprimerait les effets d'implantation ionique. Il faut cependant noter que cette méthode semble attractive pour le combustible vierge, mais l'est moins pour l'irradié, avec lequel un traitement thermique entraînerait une modification de la microstructure (diffusion des gaz de fission, relaxation des contraintes résiduelles).
- La méthode de flexion de micro-éprouvettes semble également adaptée à l'étude de l'interface entre la couche d'oxyde de zirconium et le combustible, observé autour de la pastille après irradiation. A ce jour, aucune donnée mécanique n'est disponible sur la résistance de cette interface.
- Les contraintes résiduelles semblent générer des déformations irréversibles de certaines micro-éprouvettes fabriquées au *FIB*. Il serait donc envisageable d'exploiter ce phénomène afin de mesurer les contraintes résiduelles [95] induites par l'irradiation.

V-3. Complémentarité des techniques

Finalement, l'indentation n'est pas une technique qui doit simplement être remplacée par la méthode de micro-flexion. En fait, les deux méthodes sont différentes et complémentaires.

Le volume sollicité par l'indentation est modulable avec la force, celle-ci peut aller de quelques millinewtons par nano-indentation, jusqu'à quelques newtons par indentation classique. Cette méthode permet donc de tester plusieurs éléments du matériau, les fissures générées traversent plusieurs grains, porosités et joints de grains ; mais elle ne permet pas de dissocier leur effet. Elle peut donc examiner un volume plus représentatif du matériau global. A l'inverse, les micro-éprouvettes n'ont pas un volume très modulable et ne permettent de tester qu'un seul élément du matériau. Cependant pour certains éléments, comme les joints de grains ou les plans cristallins, leur résistance était inaccessible auparavant. Ainsi pour un matériau classique, l'utilisation combinée des deux méthodes permet d'examiner la résistance du matériau à deux échelles différentes, celle du grain, mais aussi celles de quelques grains.

Il faut cependant noter que dans le cas du combustible irradié, les joints de grains ne peuvent pas être sollicités par indentation car ils cassent et empêchent toute mesure correcte de ténacité. Dans ce cas, les empreintes doivent être incluses dans un seul grain, et donc les deux méthodes sont à la même échelle, celle du grain. Afin de profiter des avantages des deux méthodes, c'est-à-dire rapidité et facilité de positionnement de l'essai pour l'indentation et précision accrue des mesures pour la flexion de micro-éprouvettes, une calibration des essais d'indentation pourrait être envisagée par les résultats de ténacité obtenus par micro-flexion. Cela permettrait d'augmenter la précision de la ténacité mesurée par des méthodes d'indentation, et une fois la calibration réalisée, les essais d'indentation pourraient être réalisés rapidement et dans différentes zones des pastilles.

Références

- [1] EDF, "Le nucléaire en chiffres," *www.edf.fr*, 2014.
- [2] CDE, "Fonctionnement d'une centrale nucléaire," *connaissancedesenergies.org*, 2018.
- [3] CEA-DEN, "Les combustibles nucléaires," *Le Monit.*, 2008.
- [4] H. Bailly, D. Menessier, and C. Prunier, "Le combustible nucléaire des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides," *Eyrolles*, 1996.
- [5] Commission canadienne de sûreté Nucléaire, "L'extraction d'uranium," *www.nuclearsafety.gc.ca*, 2013.
- [6] E. Rolstad, "A Mechanical Explanation to the Overpower Failures," *Nucl. Technol.*, vol. 25, 1975.
- [7] NEA, "Report on fuel fragmentation relocation and dispersal," 2016.
- [8] D. Lespiaux, J. Noirot, and P. Menut, "Post-test examinations of high burnup PWR fuels submitted to RIA transients in the CABRI facility," 1997.
- [9] B. Michel *et al.*, "Simulation of Pellet-Cladding Interaction with the PLEIADES Fuel Performance Software Environment," *Nucl. Technol.*, vol. 182, pp. 124–137, 2013.
- [10] Y. Monerie, "Fissuration des matériaux composites : rôle de l'interface fibre/matrice," Thèse, Université Aix-Marseille, 2000.
- [11] B. Michel, J. Sercombe, G. Thouvenin, and R. Chatelet, "3D fuel cracking modelling in pellet cladding mechanical interaction," *Eng. Fract. Mech.*, vol. 75, no. 11, pp. 3581–3598, 2008.
- [12] A. G. Evans and R. W. Davidge, "The Strength and Fracture of Stoichiometric polycrystalline UO₂," *J. Nucl. Mater.*, vol. 33, no. 33, pp. 249–260, 1969.
- [13] J. M. Gatt, J. Sercombe, I. Aubrun, and J. C. Ménard, "Experimental and numerical study of fracture mechanisms in UO₂ nuclear fuel," *Eng. Fail. Anal.*, vol. 47, pp. 299–311, 2015.
- [14] T. R. G. Kutty, K. N. Chandrasekharan, J. P. Panakkal, and J. K. Ghosh, "Fracture toughness and fracture surface energy of sintered uranium dioxide fuel pellets," *J. Mater. Sci. Lett.*, vol. 6, no. 3, pp. 260–262, 1987.
- [15] G. D. Quinn and R. C. Bradt, "On the vickers indentation fracture toughness Test," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 90, no. 3, pp. 673–680, 2007.
- [16] F. Hild, "De la rupture des matériaux à comportement fragile," Thèse université Pierre et Marie Curie, 1992.
- [17] B. I. Christian Janot, *Traité des matériaux - Tome 19, Matériaux émergents*. 2001.
- [18] E. Orowan, "Fracture and strength of solids," *Reports Prog. Phys.*, vol. 12, no. 1, p. 309, 1949.
- [19] J.-M. Haussonne, *Traité des matériaux -16. Céramiques et verres - Principes et techniques d'élaboration*. 2005.
- [20] K. C. Radford, "Effect of Fabrication Parameters and Microstructure on the Mechanical," *J. Nucl.*, vol. 84, pp. 222–236, 1979.
- [21] C. E. Inglis, "Stresses in Plates Due to the Presence of Cracks and Sharp Corners," *Trans. Inst. Nav. Archit.*, vol. 55, pp. 219–241, 1913.
- [22] S. Grange and J.-L. Prensier, "Prévoir la propagation brutale des fissures : modèles et caractérisation expérimentale," *ENS Cachan*, 2007.
- [23] D. Mauduit, "Caractérisation et modélisation de la rupture fragile de l'AlSi CE9F et d'une alumine cofrittée pour composants embarqués à application spatiales," Thèse Institut Clément Ader, 2016.
- [24] W. Weibull, "The Phenomenon of Rupture in Solids," *ingenjörs vetenskaps Akad. Handl*, vol. 153, 1939.
- [25] W. Weibull, "A statistical theory of the strength of materials," *Proc. R. Swedish Inst. Eng. Res.*, vol. 151, 1939.
- [26] G. D. Quinn, "Weibull Strength Scaling for Standardized Rectangular Flexure Specimens," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 86, no. 3, 2003.
- [27] D. P. Miannay, *Mécanique de la rupture*, Ed. de Phy. Les Ulis, 1995.
- [28] D. François, "Essais de mesure de la ténacité Mécanique de la rupture," *Tech. l'ingénieur*, 2007.
- [29] G. Irwin, "Analysis of stresses and strains near the end of a crack traversing a plate," *J. Appl. Mech.*, vol. 24, pp. 361–364, 1957.

REFERENCES

- [30] H. Tada, P. Paris, and G. Irwin, *The stress analysis of cracks handbook*. 1973.
- [31] A. A. Griffith, "The phenomena of rupture and flow in solids," *Philos. Trans. R. Soc. London*, vol. 221, pp. 163–198, 1921.
- [32] B. Lawn, *Fracture of brittle solids*, Cambridge. 1975.
- [33] D. François, A. Pineau, and A. Zaoui, *Comportement mécanique des matériaux*, Editions H. 1995.
- [34] J. Tatami *et al.*, "Local fracture toughness of Si₃N₄ ceramics measured using single-edge notched microcantilever beam specimens," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 98, no. 3, pp. 965–971, 2015.
- [35] D. Kiener, C. Motz, T. Schöberl, M. Jenko, and G. Dehm, "Determination of Mechanical Properties of Copper at the Micron Scale," *Adv. Eng. Mater.*, vol. 8, no. 11, pp. 1119–1125, 2006.
- [36] D. Munz and T. Fett, *Ceramics*, Springer. 1999.
- [37] ISO, "Méthode d'essai de résistance à la traction des céramiques monolithiques à température ambiante," *Norme Int. ISO 15490*, 2008.
- [38] ISO, "Méthode d'essai de résistance en flexion des céramiques monolithiques à température ambiante," *Norme Int. ISO 14704*, 2016.
- [39] ISO, "Méthode unifiée d'essai pour la détermination de la ténacité quasi statique," *Norme Int. ISO 12135*, 2016.
- [40] ISO, "Méthode d'essai de ténacité à la rupture des céramiques monolithiques à température ambiante sur éprouvette préfissurée sur une seule face (méthode SEPB)," *Norme Int. ISO 15732*, 2003.
- [41] ISO, "Détermination de la ténacité à la rupture des céramiques monolithiques à température ambiante par fissuration superficielle en flexion (méthode SCF)," *Norme Int. ISO 18756*, 2003.
- [42] ISO, "Méthode d'essai de ténacité à la rupture des céramiques monolithiques à température ambiante sur éprouvette entaillée en chevron (méthode CNB)," *Norme Int. ISO 24370*, 2005.
- [43] R. Damani, R. Gstrein, and R. Danzer, "Critical Notch-Root Radius Effect in SENB-S Fracture Toughness Testing," vol. 16, pp. 695–702, 1996.
- [44] H. Hertz, *Hertz's Miscellaneous Papers*. 1896.
- [45] B. Lawn and R. F. Cook, "Probing Material Properties with Sharp Indenters : A Restrospective," *J. Mater. Sci.*, vol. 47, no. 1, pp. 1–22, 2012.
- [46] D. B. Marshall *et al.*, "The Compelling Case for Indentation as a Functional Exploratory and Characterization Tool," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 98, no. 9, pp. 2671–2680, 2015.
- [47] D. M. Marsh, "Plastic Flow and Fracture in Glass," *Proce. Roy. Soc. Lond.*, vol. 282, no. 1388, pp. 33–43, 1964.
- [48] Palmqvist, "Method att Bestamma Segheten hos Spread Material, Sarskit Hardmettalar," *Jernkontorets Ann.*, pp. 141–146, 1957.
- [49] A. G. Evans and E. A. Charles, "Fracture toughness Determination by Indentation," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 59, no. 7–8, pp. 371–2, 1976.
- [50] Keysight-Technologies, "How to select the correct indenter tip," www.literature.cdn.keysight.com, 2014. .
- [51] R. F. Cook and G. M. Pharr, "Direct observation and analysis of indentation cracking in glasses and ceramics," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 73, no. 4, pp. 787–817, 1990.
- [52] K. Boussois, "Céramiques silicatées à résistance mécanique et ténacité élevées," Thèse : université de Limoges, 2013.
- [53] ASTM, "Standard Test Method for Vickers Indentation Hardness of Advanced Ceramics," *Norme Int. C 1327*, 2015.
- [54] C. B. Ponton and R. D. Rawlings, "Vickers indentation fracture toughness test Part 1 Review of literature and formulation of standardised indentation toughness equations," *Mater. Sci. Technol.*, vol. 5, pp. 865–871, 1989.
- [55] C. B. Ponton and R. D. Rawlings, "Vickers indentation fracture toughness test Part 2 Review of literature and formulation of standardised indentation toughness equations," *Mater. Sci. Technol.*, vol. 5, pp. 961–975, 1989.
- [56] B. R. Lawn, A. G. Evans, and D. B. Marshall, "Elastic/Plastic Indentation Damage in Ceramics : The Median/Radial Crack System," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 63, p. 574, 1980.
- [57] G. R. Anstis *et al.*, "A Critical Evaluation of Indentation Techniques for Measuring Fracture Toughness: I, Direct Crack Measurements," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 64, no. 9, pp. 533–538, 1981.

REFERENCES

- [58] M. T. Laugier, "New Formula of indentation toughness in ceramics," *J. Mater. Sci. Lett.*, vol. 6, pp. 355–356, 1987.
- [59] K. Niihara, R. Morena, and O. Metals, "Evaluation of KIC of brittle solids by the indentation method with low crack-to-indent ratios," *J. Mater. Sci. Lett.*, vol. 1, pp. 13–14, 1982.
- [60] P. C. Paris and G. C. Sih, "Stress analysis of cracks," *ASTM STP*, vol. 381, pp. 30–80, 1965.
- [61] G. C. Sih, "Strain-energy density factor applied to mixed mode crack problems," *Int. J. Fract.*, no. 10, pp. 305–321, 1974.
- [62] R. D. Dukino and M. V. Swain, "Comparative Measurement of Indentation Fracture Toughness with Berkovich and Vickers Indenters," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 75, no. 12, pp. 3299–3304, 1992.
- [63] N. Cuadrado, D. Casellas, M. Anglada, and E. Jiménez-Piqué, "Evaluation of fracture toughness of small volumes by means of cube-corner nanoindentation," *Scr. Mater.*, vol. 66, no. 9, pp. 670–673, 2012.
- [64] T. Nishida, T. Hanaki, and G. Pezzotti, "Effect of root notch radius on the fracture toughness of a fine-grained alumina," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 77, no. 2, pp. 606–608, 1994.
- [65] S. Wiederhorn, "Fracture of ceramics," *NBS Spec. Publ. Mech. Therm. Prop. Ceram.*, vol. 303, pp. 217–41, 1969.
- [66] P. Hosemann, "Development of Ultra Small Scale Mechanical Testing and Localized He Implantation for Nuclear Applications," *Adv. Charact.*, vol. 114, pp. 1035–1038, 2016.
- [67] P. Hosemann, C. Shin, and D. Kiener, "Small scale mechanical testing of irradiated materials," *Mater. Res. Soc.*, vol. 30, no. 9, pp. 1231–1245, 2015.
- [68] F. Urena, S. H. Olsen, L. Siller, U. Bhaskar, T. Pardo, and J.-P. Raskin, "Strain in silicon nanowire beams," *J. Appl. Phys.*, vol. 112, no. 11, 2012.
- [69] B. N. Jaya, C. Kirchlechner, and G. Dehm, "Can microscale fracture tests provide reliable fracture toughness values ? A case study in silicon," *J. Mater. Res.*, vol. 30, no. 5, 2015.
- [70] B. N. Jaya and V. Jayaram, "Crack stability in edge-notched clamped beam specimens: Modeling and experiments," *Int. J. Fract.*, vol. 188, no. 2, pp. 213–228, 2014.
- [71] S. Liu, J. M. Wheeler, P. R. Howie, X. T. Zeng, J. Michler, and W. J. Clegg, "Measuring the fracture resistance of hard coatings," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 102, no. 17, pp. 1–5, 2013.
- [72] M. Sebastiani, K. E. Johanns, E. G. Herbert, F. Carassiti, and G. M. Pharr, "A novel pillar indentation splitting test for measuring fracture toughness of thin ceramic coatings," *Philos. Mag.*, pp. 1–17, 2014.
- [73] M. Sebastiani, K. E. Johanns, E. G. Herbert, and G. M. Pharr, "Measurement of fracture toughness by nanoindentation methods: Recent advances and future challenges," *Curr. Opin. Solid State Mater. Sci.*, vol. 19, no. 6, pp. 324–333, 2015.
- [74] B. N. Jaya *et al.*, "Microscale Fracture Behavior of Single Crystal Silicon Beams at Elevated Temperatures," *Nano Lett.*, vol. 16, no. 12, pp. 7597–7603, 2016.
- [75] W. Luo, C. Kirchlechner, X. Fang, S. Brinckmann, G. Dehm, and F. Stein, "Influence of composition and crystal structure on the fracture toughness of NbCo₂ Laves phase studied by micro-cantilever bending tests," *Mater. Des.*, vol. 145, pp. 116–121, 2018.
- [76] S. Johansson, J. Å. Schweitz, L. Tenerz, and J. Tirén, "Fracture testing of silicon microelements in situ in a scanning electron microscope," *J. Appl. Phys.*, vol. 63, no. 10, pp. 4799–4803, 1988.
- [77] T. P. Weihs, S. Hong, J. C. Bravman, and W. D. Nix, "Mechanical deflection of cantilever microbeams : A new technique for testing the mechanical properties of thin films," *J. Mater. Res.*, vol. 3, no. 5, pp. 931–942, 1988.
- [78] D. Di Maio and S. G. Roberts, "Measuring fracture toughness of coatings using focused-ion-beam-machined microbeams," *J. Mater. Res.*, vol. 20, no. 02, pp. 299–302, 2005.
- [79] C. Motz, T. Schöberl, and R. Pippan, "Mechanical properties of micro-sized copper bending beams machined by the focused ion beam technique," *Acta Mater.*, vol. 53, no. 15, pp. 4269–4279, 2005.
- [80] K. Matoy *et al.*, "A comparative micro-cantilever study of the mechanical behavior of silicon based passivation films," *Thin Solid Films*, vol. 518, no. 1, pp. 247–256, 2009.
- [81] S. Massl, W. Thomma, J. Keckes, and R. Pippan, "Investigation of fracture properties of magnetron-sputtered TiN films by means of a FIB-based cantilever bending technique," *Acta Mater.*, vol. 57, no. 6, pp. 1768–1776, 2009.
- [82] R. Daniel *et al.*, "Grain boundary design of thin films: Using tilted brittle interfaces for multiple crack deflection toughening," *Acta Mater.*, vol. 122, pp. 130–137, 2017.

REFERENCES

- [83] J. Gong and A. J. Wilkinson, "A microcantilever investigation of size effect, solid-solution strengthening and second-phase strengthening for a prism slip in α -Ti," *Acta Mater.*, vol. 59, no. 15, pp. 5970–5981, 2011.
- [84] F. Iqbal, J. Ast, M. Göken, and K. Durst, "In situ micro-cantilever tests to study fracture properties of NiAl single crystals," *Acta Mater.*, vol. 60, no. 3, pp. 1193–1200, 2012.
- [85] M. G. Mueller, V. Pejchal, G. Zagar, A. Singh, M. Cantoni, and A. Mortensen, "Fracture toughness testing of nanocrystalline alumina and fused quartz using chevron-notched microbeams," *Acta Mater.*, vol. 86, pp. 385–395, 2015.
- [86] G. Žagar, V. Pejchal, M. G. Mueller, L. Michelet, and A. Mortensen, "Fracture toughness measurement in fused quartz using triangular chevron-notched micro-cantilevers," *Scr. Mater.*, vol. 112, pp. 132–135, 2016.
- [87] N. Blanchard and V. D. M. Bertrand, "Ion Matter Interaction," 2016.
- [88] C. S. Kim, S. H. Ahn, and D. Y. Jang, "Review: Developments in micro/nanoscale fabrication by focused ion beams," *Vacuum*, vol. 86, no. 8, pp. 1014–1035, 2012.
- [89] Oxford-Instrument, "EBSD explained," *nano.oxinst.com*, 2015. .
- [90] B. Philippi, K. Matoy, J. Zechner, C. Kirchlechner, and G. Dehm, "Fracture toughness of intermetallic Cu₆Sn₅ in lead-free solder microelectronics," *Scr. Mater.*, vol. 123, pp. 38–41, 2016.
- [91] W. Cao, A. Kundu, Z. Yu, M. P. Harmer, and R. P. Vinci, "Direct correlations between fracture toughness and grain boundary segregation behavior in ytterbium-doped magnesium aluminate spinel," *Scr. Mater.*, vol. 69, no. 1, pp. 81–84, 2013.
- [92] D. E. J. Armstrong, A. J. Wilkinson, and S. G. Roberts, "Micro-mechanical measurements of fracture toughness of bismuth embrittled copper grain boundaries," *Philos. Mag. Lett.*, vol. 91, no. 6, pp. 394–400, 2011.
- [93] L. Liu, Z. Chen, C. Liu, Y. Wu, and B. An, "Micro-mechanical and fracture characteristics of Cu₆Sn₅ and Cu₃Sn intermetallic compounds under micro-cantilever bending," *Intermetallics*, vol. 76, pp. 10–17, 2016.
- [94] E. Camposilvan, O. Torrents, and M. Anglada, "Small-scale mechanical behavior of zirconia," *Acta Mater.*, vol. 80, pp. 239–249, 2014.
- [95] A. D. Norton, S. Falco, N. Young, J. Severs, and R. I. Todd, "Microcantilever investigation of fracture toughness and subcritical crack growth on the scale of the microstructure in Al₂O₃," *J. Eur. Ceram. Soc.*, vol. 35, no. 16, pp. 4521–4533, 2015.
- [96] F. Y. Cui, A. Kundu, A. Krause, M. P. Harmer, and R. P. Vinci, "Acta Materialia Surface energies , segregation , and fracture behavior of magnesium aluminate spinel low-index grain boundary planes," *Acta Mater.*, vol. 148, pp. 320–329, 2018.
- [97] D. Kupka and E. T. Lilleodden, "Mechanical Testing of Solid-Solid Interfaces at the Microscale," *Exp. Mech.*, vol. 52, no. 6, pp. 649–658, 2012.
- [98] M. D. Abad *et al.*, "Evaluation of the Mechanical Properties of Naturally Grown Multilayered Oxides Formed on HCM12A Using Small Scale Mechanical Testing," *Oxid. Met.*, vol. 84, no. 1–2, pp. 211–231, 2015.
- [99] H. Chan, S. G. Roberts, and J. Gong, "Micro-scale fracture experiments on zirconium hydrides and phase boundaries," *J. Nucl. Mater.*, vol. 475, pp. 105–112, 2016.
- [100] N. A. Mara and A. A. Woodruff, "Nanomechanical Behavior of U-10Mo/Zr/Al Fuel Assemblies N.A.," in *RERT 2011*, 2011.
- [101] J. Schaufler, C. Schmid, K. Durst, and M. Göken, "Determination of the interfacial strength and fracture toughness of a-C:H coatings by in-situ microcantilever bending," *Thin Solid Films*, vol. 522, pp. 480–484, 2012.
- [102] D. Picard, D. Leguillon, and C. Putot, "A method to estimate the influence of the notch-root radius on the fracture toughness measurement of ceramics," *J. Eur. Ceram. Soc.*, vol. 26, no. 8, pp. 1421–1427, 2006.
- [103] D. E. J. Armstrong, Haseeb A.S.M.A, S. G. Roberts, A. J. Wilkinson, and B. K., "Nanoindentation and micro-mechanical fracture toughness of electrodeposited nanocrystalline Ni-W alloy films," *Thin Solid Films*, vol. 520, pp. 4369–4372, 2012.
- [104] T. Fett and D. Munz, "Stress Intensity Factors and Weight Functions," *Comput. Mech. Publ.*, 1997.
- [105] J. P. Best, J. Zechner, J. M. Wheeler, R. Schoeppner, M. Morstein, and J. Michler, "Small-scale fracture toughness of ceramic thin films: the effects of specimen geometry, ion beam notching and high temperature on chromium nitride toughness evaluation," *Philos. Mag.*, vol. 96, no. 32–34, pp. 3552–3569, 2016.
- [106] J. P. Best *et al.*, "A comparison of three different notching ions for small-scale fracture toughness measurement," *Scr. Mater.*, vol. 112, pp. 71–74, 2016.
- [107] F. Y. Cui and R. P. Vinci, "A chevron-notched bowtie micro-beam bend test for fracture toughness measurement of brittle materials," *Scr. Mater.*, vol. 132, pp. 53–57, 2017.

REFERENCES

- [108] D. E. J. Armstrong, A. J. Wilkinson, and S. G. Roberts, "Measuring anisotropy in Young's modulus of copper using microcantilever testing," *J. Mater. Res.*, vol. 24, no. 11, pp. 3268–3276, 2009.
- [109] S. Wurster, C. Motz, and R. Pippan, "Characterization of the fracture toughness of micro-sized tungsten single crystal notched specimens," *Philos. Mag.*, vol. 92, no. 14, pp. 1803–1825, 2012.
- [110] S. Bechtel *et al.*, "A method to determine site-specific, anisotropic fracture toughness in biological materials," *Scr. Mater.*, vol. 66, no. 8, pp. 515–518, 2012.
- [111] G. Zagar, A. Singh, V. Pejchal, M. G. Mueller, and A. Mortensen, "On measuring fracture toughness under load control in the presence of slow crack growth," *J. Eur. Ceram. Soc.*, vol. 35, no. 11, pp. 3155–3166, 2015.
- [112] N. Payraudeau, S. Meille, and C. Langlois, "Model Materials for Irradiated Fuels : Study of Local Mechanical Behavior Using Nanoindentation and Microstructural Analysis," in *Microsc. Microanal.*, 2014, pp. 19–21.
- [113] J. Soulacroix, "Approche micromécanique du comportement du combustible dioxyde d'uranium," *PhD Thesis, ParisTech*, p. 255, 2014.
- [114] J. B. Wachtman, M. L. Wheat, H. J. Anderson, and J. L. Bates, "Elastic Constants of Single Crystal UO₂ at 25 Degrees 25°C," *J. Nucl. Mater.*, vol. 16, no. 1, p. 39–, 1965.
- [115] A. Tikhonovsky, "Plastic deformation of cubic zirconia single crystals: The influence of the orientation of compression axis and yttria stabilizer content," pp. 17–30, 2001.
- [116] A. Nakajima, A. Yoshihara, and M. Ishigame, "Defect-induced Raman spectra in doped CeO₂," *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.*, vol. 50, no. 18, 1994.
- [117] L. Gremillard, "Bioceramiques : Des Monolithes Aux Composites," HDR: INSA Lyon, 2009.
- [118] L. Grémillard, "Relations microstructure-durabilité dans une zircone biomédiale," Thèse : INSA Lyon, 2002.
- [119] S. Tekeli, "Influence of alumina addition on grain growth and room temperature mechanical properties of 8YSCZ/Al₂O₃ composites," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 65, no. 6, pp. 967–972, 2005.
- [120] H. M. Kandil, J. D. Greiner, and J. F. Smith, "Single-Crystal Elastic Constants of Yttria-Stabilized Zirconia in the Range 20° to 700°C," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 67, no. 5, pp. 341–346, 1984.
- [121] R. A. Wolfe and S. F. Kaufman, "Mechanical behavior of oxydes fuels (Technical Report, Bettis Atomic Power Lab.)," 1967.
- [122] J. Kondoh, H. Shiota, K. Kawachi, and T. Nakatani, "Yttria concentration dependence of tensile strength in yttria-stabilized zirconia," *J. Alloys Compd.*, vol. 365, no. 1–2, pp. 253–258, 2004.
- [123] J. W. Adams, R. Ruh, and K. S. Mazdizyasni, "Yttria-Stabilized Zirconia versus Temperature," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 80, no. 4, pp. 903–908, 1997.
- [124] V. Menvie Bekale, G. Sattonnay, C. Legros, A. M. Huntz, S. Poissonnet, and L. Thomé, "Mechanical properties of cubic zirconia irradiated with swift heavy ions," *J. Nucl. Mater.*, vol. 384, no. 1, pp. 70–76, 2009.
- [125] P. Dahl *et al.*, "Densification and properties of zirconia prepared by three different sintering techniques," *Ceram. Int.*, vol. 33, no. 8, pp. 1603–1610, 2007.
- [126] J. Lian, J. E. Garay, and J. Wang, "Grain size and grain boundary effects on the mechanical behavior of fully stabilized zirconia investigated by nanoindentation," *Scr. Mater.*, vol. 56, pp. 1095–1098, 2007.
- [127] G. N. Morscher, P. Pirouz, and A. H. Heuer, "Temperature Dependence of Hardness in Yttria-Stabilized Zirconia Single Crystals," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 74, no. 3, pp. 491–500, 1991.
- [128] A. Pajares and F. Guiberteau, "Microhardness and Fracture Toughness Anisotropy in Cubic Zirconium Oxide Single Crystals," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 71, no. 7, pp. 332–333, 1988.
- [129] K. Hiraga, K. Morita, B. N. Kim, and Y. Sakka, "Fracture toughness of yttria-stabilized cubic zirconia (8Y-CSZ) doped with pure silica," *Nippon Kinzoku Gakkaishi/Journal Japan Inst. Met.*, vol. 69, no. 10, pp. 928–932, 2005.
- [130] R. A. Cutler, J. R. Reynolds, and A. Jones, "Sintering and Characterization of Polycrystalline Monoclinic, Tetragonal, and Cubic Zirconia," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 75, no. 8, pp. 2173–2183, 1992.
- [131] A. N. Kumar and B. F. Sørensen, "Fracture Resistance and Stable Crack-Growth Behavior of 8-mol%-Yttria-Stabilized Zirconia," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 83, no. 5, pp. 1199–1206, 2000.
- [132] J. D. Stanescu and H. M. Chan, "Indentation study of fracture toughness anisotropy in cubic zirconium oxide single crystals," *J. Mater. Sci. Lett.*, vol. 11, pp. 1364–1365, 1992.

REFERENCES

- [133] D. Michel, L. Mazerolles, and M. Perez Y Jorba, "Fracture of metastable tetragonal zirconia crystals," *J. Mater. Sci.*, vol. 18, no. 9, pp. 2618–2628, 1983.
- [134] A. Pajares, F. Guiberteau, A. Dominguez-rodriguez, and A. H. Heuer, "Indentation-induced cracks and the toughness anisotropy of 9.4-mol%-yttria-stabilized cubic zirconia single crystals," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 62, pp. 859–862, 1991.
- [135] R. P. Ingel, D. Lewis, B. A. Bender, and R. W. Rice, "Temperature Dependence of Strength and Fracture Toughness of ZrO₂ Single Crystals," *Commun. Am. Ceram. Soc.*, no. September, pp. 150–152, 1982.
- [136] R. P. Ingel, R. W. Rice, and D. Lewis, "Room-Temperature Strength and Fracture of ZrO₂-Y₂O₃ Single Crystals," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 65, no. 7, pp. 108–109, 1982.
- [137] J. Chevalier, A. H. De Aza, L. Grémillard, R. Zenati, and G. Fatozzi, "Slow Crack Growth in Zirconia Ceramics : From the single crystal to the composite," *Mater. Eng.*, vol. 12, no. 2, pp. 159–178, 2001.
- [138] N. Khan and B. C. H. Steele, "ZrO₂-CeO₂-Y₂O₃ : electrical and mechanical property relationships with the microstructure," *Mater. Sci. Eng.*, vol. 8, pp. 265–271, 1991.
- [139] K. Kobayashi, H. Kuwajima, and T. Masaki, "Phase change and mechanical properties of ZrO₂-Y₂O₃ solid electrolyte after ageing," *Solid State Ionics*, vol. 3–4, pp. 489–493, 1981.
- [140] A. Rico, M. A. Garrido Maneiro, M. T. Gomez Del Rio, and J. Rodriguez, "On the determination of elastic modulus in very stiff materials by depth sensing indentation," *J. Mater. Sci.*, vol. 44, no. 21, pp. 5795–5799, 2009.
- [141] K. Kurosaki, D. Setoyama, J. Matsunaga, and S. Yamanaka, "Nanoindentation tests for TiO₂, MgO, and YSZ single crystals," vol. 386, no. May 2004, pp. 261–264, 2005.
- [142] W. D. Nix and H. Gao, "Indentation size effects in crystalline materials : a law for strain gradient plasticity," *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 46, no. 3, 1998.
- [143] J. B. Quinn and G. D. Quinn, "Indentation brittleness of ceramics: a fresh approach," *J. Mater. Sci.*, vol. 32, no. 16, pp. 4331–4346, 1997.
- [144] A. Pajares, F. Guiberteau, A. Dominguez-Rodriguez, and A. H. Heuer, "Indentation-Induced Cracks and the Toughness Anisotropy of 9.4-mol%-Yttria-Stabilized Cubic Zirconia Single Crystals," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 74, pp. 859–862, 1991.
- [145] F. Ebrahimi and L. Kalwani, "Fracture anisotropy in silicon single crystal," vol. 268, no. June 1998, pp. 116–126, 1999.
- [146] M. T. Laugier, "Palmqvist toughness in WC-Co composites viewed as a ductile/brittle transition," *J. Mater. Sci. Lett.*, vol. 6, pp. 768–770, 1987.
- [147] M. Lesné, "Stage de fin d'étude : Caractérisation des propriétés mécaniques de matériaux modèles de combustible," 2015.
- [148] S. Brinckmann, K. Matoy, C. Kirchlechner, and G. Dehm, "On the influence of microcantilever pre-crack geometries on the apparent fracture toughness of brittle materials," *Acta Mater.*, vol. 136, pp. 281–287, 2017.
- [149] M. G. Mueller, G. Zagar, and A. Mortensen, "Stable room-temperature micron-scale crack growth in single-crystalline silicon," *J. Mater. Res.*, vol. 32, no. 19, 2017.
- [150] T. L. Norman, D. Vashishth, and D. B. Burr, "Fracture toughness of human bone under tension," *J. Biomech.*, vol. 28, no. 3, pp. 309–320, 1994.
- [151] G. C. Sih, P. C. Paris, and G. R. Irwin, "On cracks in rectilinearly anisotropic bodies," *Int. J. Fract.*, pp. 189–203, 1965.
- [152] F. L. Lowrie, "Mechanical properties of a solid oxide fuel cell electrolyte," Imperial College of London, 1996.
- [153] C. A. Volkert, A. M. Minor, and G. Editors, "Focused Ion Beam Micromachining," *MRS Bull.*, vol. 32, pp. 389–399, 2007.
- [154] M. Ibrahim, "Étude du comportement mécanique d'UO₂ implanté en helium par micro-diffraction des rayons X et modélisation par éléments finis," Thèse : Université Paris-Est, 2016.
- [155] D. G. Martin, "The elastic constants of polycrystalline UO₂ and (U,Pu) mixed oxides : a review and recommendations," *High Temp. - High Press.*, vol. 21, pp. 13–24, 1989.
- [156] T. Cardinaels *et al.*, "Chromia doped UO₂ fuel : Investigation of the lattice parameter," *J. Nucl. Mater.*, vol. 424, no. 1–3, pp. 252–260, 2012.
- [157] M. Oguma, "Microstructure effects on fracture strength of UO₂ fuel pellets," *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 19, no. 12, pp. 1005–1014, 1982.
- [158] Y. Guerin, "Etude par compression a hautes temperatures de la deformation plastique du bioxyde et du monocarbure d'uranium,"

REFERENCES

- Thèse : Université Claude Bernard, 1973.
- [159] C. Gandhi and M. F. Ashby, "Overview no. 5. Fracture-mechanism maps for materials which cleave: F.C.C., B.C.C. and H.C.P. metals and ceramics," *Acta Metall.*, vol. 27, no. 10, pp. 1565–1602, 1979.
 - [160] Y. Guerin, "Etude par compression a hautes temperatures de la deformation plastique du bioxyde d'uranium polycristallin," *J. Nucl. Mater.*, vol. 56, pp. 61–75, 1975.
 - [161] J. Baland, "Simulation expérimentale des effets d'irradiation sur le comportement thermomécanique du combustible UO₂ : impact des produits de fission solides et gazeux," Thèse : EMSE Saint-Etienne, 2007.
 - [162] R. G. Robins and P. J. Baldock, "Uranium oxide Cleavage," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 43, no. 4, p. 228, 1960.
 - [163] M. R. Castell, C. Muggelberg, S. L. Dudarev, A. P. Sutton, G. A. D. Briggs, and D. T. Goddard, "Imaging insulating oxides by elevated-temperature STM," *Appl. Phys. A Mater. Sci. Process.*, vol. 66, pp. 963–967, 1998.
 - [164] M. R. Castell, S. L. Dudarev, C. Muggelberg, A. P. Sutton, G. A. D. Briggs, and D. T. Goddard, "Microscopy of Metal Oxide Surfaces," *Microsc. Microanal.*, vol. 6, no. 4, pp. 324–328, 2000.
 - [165] P. W. Tasker, "The surface properties of uranium dioxide," *Surf. Sci.*, vol. 78, pp. 315–324, 1979.
 - [166] P. Hosemann, "Small-scale mechanical testing on nuclear materials : bridging the experimental length-scale gap," *Scr. Mater.*, vol. 143, pp. 161–168, 2018.
 - [167] D. Frazer, "Elevated Temperature Small Scale Mechanical Testing of Uranium Dioxide," Thèse : Berkeley University, 2018.
 - [168] R. O. A. Hall, M. J. Mortimer, and D. A. Mortimer, "Surface energy measurements on UO₂ - a critical review," *J. Nucl. Mater.*, vol. 148, pp. 237–256, 1987.
 - [169] Y. Zhang, P. C. Millett, M. R. Tonks, X. Bai, and S. B. Biner, "Molecular dynamics simulations of intergranular fracture in UO₂ with nine empirical interatomic potentials," *J. Nucl. Mater.*, vol. 452, no. 1–3, pp. 296–303, 2014.
 - [170] F. N. Skomurski, R. C. Ewing, A. L. Rohl, J. D. Gale, and U. Becker, "Quantum mechanical vs. empirical potential modeling of uranium dioxide (UO₂) surfaces : (111), (110), and (100)," *Am. Mineral.*, vol. 91, no. 11–12, pp. 1761–1772, 2015.
 - [171] G. Sottonnay and R. Tétot, "Bulk, surface and point defect properties in UO₂ from a tight-binding variable-charge model," *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 25, 2013.
 - [172] L. Li, W. Bao-Tian, and Z. Ping, "Ideal Strengths and Bonding Properties of UO₂ under Tension," *Chinese Phys. Lett.*, vol. 32, no. 3, 2015.
 - [173] J. Noirot, L. Desgranges, and J. Lamontagne, "Detailed characterisations of high burn-up structures in oxide fuels," *J. Nucl. Mater.*, vol. 372, pp. 318–339, 2008.
 - [174] H. Matzke, *Indentation Fracture and Mechanical Properties of Ceramic Fuels and Waste Ceramics and Glasses*, Hardwood A. 1987.
 - [175] J. Spino, K. Vennix, and M. Coquerelle, "Detailed characterisation of the rim microstructure in PWR fuels in the burn-up range 40-67 GWd/tM," *J. Nucl. Mater.*, vol. 231, no. 3, pp. 179–190, 1996.
 - [176] I. Zacharie-Aubrun, R. Henry, T. Blay, L. Brunaud, C. Langlois, and S. Meille, "Communication à venir."
 - [177] K. A. Terrani, M. Balooch, J. R. Burns, and Q. B. Smith, "Young 's modulus evaluation of high burnup structure in UO₂ with nanometer resolution," *J. Nucl. Mater.*, vol. 508, pp. 33–39, 2018.
 - [178] Y. Zhang, X. Liu, P. C. Millett, M. Tonks, and D. A. Andersson, "Crack tip plasticity in single crystal UO₂ : Atomistic simulations," *J. Nucl. Mater.*, vol. 430, pp. 96–105, 2012.
 - [179] C. Cagna, "Influence des gaz de fission sur l'état mécanique des combustibles oxydes irradiés," Thèse : ENSAM Paris, 2016.
 - [180] D. Leguillon, "Strength or toughness ? A criterion for crack onset at a notch," vol. 21, pp. 61–72, 2002.
 - [181] E. Martin, D. Leguillon, O. Sevecek, and R. Bermejo, "Understanding the tensile strength of ceramics in the presence of small critical flaws," *Eng. Fract. Mech.*, vol. 201, pp. 167–175, 2018.
 - [182] C. Petit, "Etude des propriétés mécaniques de matériaux cellulaires par tomographie aux rayons X et modélisation par éléments finis," Thèse : INSA Lyon, 2015.



FOLIO ADMINISTRATIF

THESE DE L'UNIVERSITE DE LYON OPEREE AU SEIN DE L'INSA LYON

NOM : HENRY		DATE de SOUTENANCE prévue : 23/05/2019	
Prénoms : Ronan			
TITRE : Caractérisation locale des propriétés à la rupture du combustible nucléaire irradié			
NATURE : Doctorat		Numéro d'ordre : 2019LYSEI031	
Ecole doctorale : Ecole doctorale Matériaux de Lyon			
Spécialité : Ingénierie des Matériaux			
RESUME :			
Le combustible nucléaire UO_2 des réacteurs à eau pressurisée (REP) est une céramique frittée sous forme de pastilles. Il est le siège de la réaction de fission nucléaire et subit d'importantes modifications microstructurales quand il est irradié en réacteur. En situation nominale de fonctionnement, les contraintes induites par le gradient thermique entre le centre et la périphérie de la pastille génèrent rapidement des fissures qui divisent la pastille en fragments millimétriques. En situations incidentelles ou accidentelles, une fissuration supplémentaire peut se produire à différentes échelles et avoir un impact notable sur le comportement du combustible. Les outils de simulation du comportement du combustible en réacteur nécessitent comme données d'entrée certaines propriétés du matériau. Afin de modéliser la fissuration du combustible dans le domaine fragile, les propriétés à rupture et leur évolution avec l'irradiation ont besoin d'être connues. Cependant, à cause de l'état de fissuration du combustible irradié, il est impossible d'y fabriquer des éprouvettes conventionnelles macroscopiques de test mécanique et donc de déterminer ces données. L'objectif de ce travail de thèse a consisté à développer des méthodes de mesure des propriétés fragiles du combustible irradié à température ambiante. Pour cela, des essais à l'échelle microscopique ont été mis au point afin de sonder le matériau à l'intérieur des fragments de combustible. Deux types d'essais ont été étudiés. D'une part, des travaux initiés avant cette thèse, portant sur la nano-indentation, ont été complétés. Cette méthode consiste à faire une empreinte à l'aide d'une pointe pyramidale sur la surface polie de l'échantillon. Selon la charge appliquée, des fissures se forment autour des marques d'indentation, permettant de remonter à une mesure locale de la ténacité du matériau. D'autre part, un essai conventionnel de flexion d'éprouvettes a été transposé à l'échelle microscopique. Il permet de déterminer une ténacité quand l'éprouvette est entaillée, et une contrainte à rupture quand elle ne l'est pas. Pour réaliser ces micro-éprouvettes, un microscope à faisceau ionique focalisé (FIB) est utilisé, tandis qu'un nano-indenteur permet de les fléchir jusqu'à rupture. Afin de mettre au point et d'optimiser les protocoles de mesures, un matériau modèle a d'abord été utilisé : la zircone cubique ZrO_2. Cette céramique a des propriétés cristallographiques et mécaniques très proches de celles de l'UO_2, et permet, dans les phases de mise au point, de s'affranchir des difficultés de mise en œuvre liées à l'environnement nucléaire. Ensuite, les méthodes de mesure ont été appliquées à un combustible vierge puis à un combustible irradié en REP. Ces travaux ont permis de mettre en avant la complémentarité des deux méthodes étudiées. L'indentation est une technique rapide et pratique, qui permet la réalisation de nombreux essais et à différentes positions radiales dans les pastilles de combustible irradié. La flexion de micro-éprouvettes est longue à mettre en œuvre, et nécessite de nombreux équipements de pointe, mais est plus proche des tests mécaniques classiques. Elle permet de mesurer les propriétés à rupture manquantes et recherchées sur le combustible irradié, mais aussi d'évaluer la résistance de plans cristallographiques spécifiques et de joints de grains, qui jusqu'à maintenant étaient inaccessibles sur le combustible. Finalement, ces deux méthodes sont maintenant suffisamment mûres pour être appliquées sur une plus grande variété de combustibles.			
MOTS-CLÉS : Matériaux céramiques, Propriétés à la rupture, Essais micromécaniques, Combustible nucléaire			
Laboratoire (s) de recherche :		Université de Lyon MATEIS – CNRS UMR 5510 – INSA de Lyon 7 Avenue Jean Capelle 69621 VILLEURBANNE CEDEX FRANCE	
Directeur de thèse : MEILLE Sylvain			
Président de jury :			
Composition du jury :			
ESTEVEZ Rafaël		MEILLE Sylvain	
JOSSE Claudie		LANGLOIS Cyril	
MARTIN Éric		ZACHARIE-AUBRUN Isabelle	
PARDOEN Thomas		GATT Jean-Marie	